



Ensembles de centres azote-lacune du diamant pour la cartographie de champs magnétiques à l'échelle microscopique et l'analyse de spectres de signaux dans le domaine hyperfréquence

Mayeul Chipaux

► To cite this version:

Mayeul Chipaux. Ensembles de centres azote-lacune du diamant pour la cartographie de champs magnétiques à l'échelle microscopique et l'analyse de spectres de signaux dans le domaine hyperfréquence. Autre [cond-mat.other]. École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2014. Français. NNT : 2014DENS0057 . tel-01154125

HAL Id: tel-01154125

<https://theses.hal.science/tel-01154125>

Submitted on 21 May 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE DOCTORAT

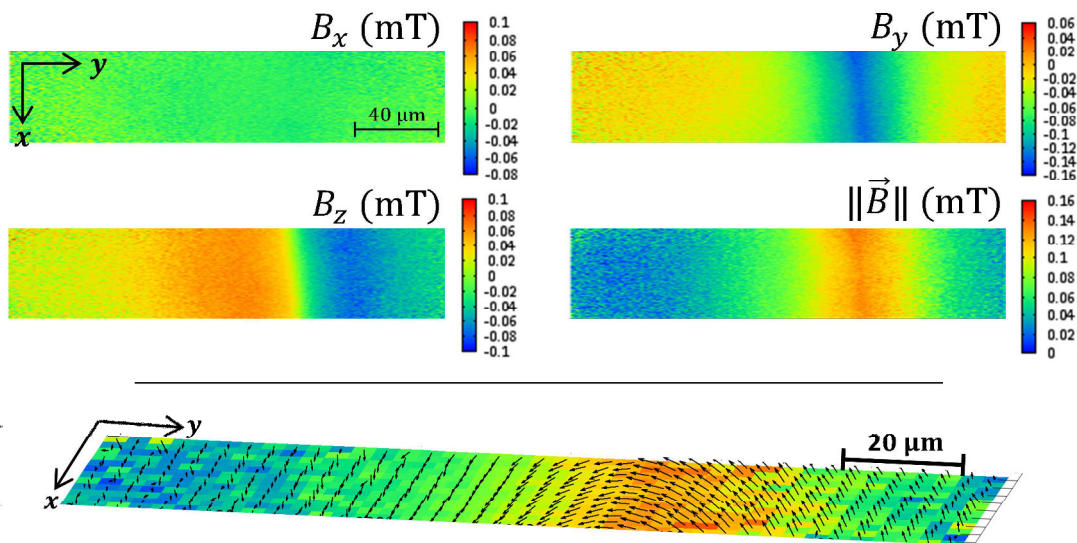
Sciences physiques

Présentée par

Monsieur Mayeul CHIPAUX

pour obtenir le grade de Docteur de l'École Normale Supérieure de Cachan

ENSEMBLES DE CENTRES AZOTE-LACUNE DU DIAMANT POUR LA CARTOGRAPHIE DE CHAMPS MAGNÉTIQUES À L'ÉCHELLE MICROSCOPIQUE ET L'ANALYSE DE SPECTRES DE SIGNAUX DANS LE DOMAINE HYPERFRÉQUENCE



Champ magnétique rayonné par un conducteur parcouru par un courant.

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau le 12 décembre 2014, devant le jury composé de :

Mme Alix GICQUEL	Professeure des universités	Présidente du jury
M. Rémi CARMINATI	Professeur ESPCI	Rapporteur
M. Dafiné RAVELOSONA	Directeur de recherche	Rapporteur
M. Patrick MALETINSKY	Professeur associé	Examineur
M. Antoine NOWODZINSKI	Ingénieur	Membre invité
M. Thierry DEBUSSCHERT	Ingénieur	Directeur de thèse
M. Jean-François ROCH	Professeur des universités	Co-directeur de thèse

Remerciements

La thèse effectuée ces trois dernières années à *Thales Research & Technology* constitue une expérience enrichissante, sur les plans scientifique et professionnel certainement, mais aussi et surtout sur le plan personnel. Cela, je le dois à la qualité des échanges humains que j'ai eu la chance de vivre tout au long de cette thèse. Je souhaite donc remercier chaleureusement les personnes qui ont rendu cette aventure possible et à ce point riche en enseignements.

En premier lieu, je remercie Thierry DEBUISSCHERT à qui incombait, non seulement la lourde tâche de diriger ma thèse, mais également celle de l'encadrer au quotidien. Thierry, ton engagement pour la qualité de mon travail et pour sa reconnaissance par la communauté scientifique n'a jamais faibli tout au long de ces trois années. Je t'en suis sincèrement reconnaissant, et conserve précieusement tous les enseignements que tu m'as transmis.

À *Thales*, je remercie également Loïc TORAILLE. Loïc, j'ai particulièrement apprécié travailler avec toi. Tes qualités scientifiques et ta vivacité d'esprit, associées à ton enthousiasme et à ton volontarisme communicatifs, ont joué un rôle crucial pour les résultats présentés ici. Ton retour dans l'équipe des centres NV sera, à n'en point douter, un atout considérable pour ce domaine de recherche pour ceux qui s'y consacrent.

Je remercie bien évidemment Daniel DOLFI pour son accueil au sein du Groupe de Recherche en Physique et Arnaud BRIGNON pour celui au laboratoire Micro et Nano-Physique. Je salue les discussions scientifiques et techniques de Yves GOURDEL pour le polissage et la préparation des échantillons, Christian LARAT pour ses idées lumineuses ou spectrales, Loïc MORVAN pour son expertise dans ce domaine, Denis CRÉTÉ et Bruno MARCILHAC pour les hyperfréquences, Stéphane XAVIER et Shailendra BANSROPUN pour les antennes, Bernard SERVET et Renato BISARO pour les caractérisations de nos échantillons, Pierre SENEOR et Vincent CROS pour les échantillons magnétiques. Merci également à Mathieu, Marie, les Sylvain, François, Alfredo, Aude, Christophe...

Merci également à Jean-François ROCH d'avoir accepté la co-direction académique de ma thèse. Jean-François, je te remercie pour nos discussions scientifiques, ton humanité, et pour tes conseils toujours judicieux, en particulier sur la valorisation des résultats scientifiques.

Je remercie également Vincent JACQUES pour m'avoir fait découvrir le domaine de centres NV, et pour toutes nos collaborations. Dans cette équipe, mes pensées vont aussi à Jean-Philippe TÉTIENNE, Margarita LESIK, et Ludovic MAYER pour nos échanges nombreux tous au long de ces trois années, ainsi qu'à Loïc RONDIN, Anaïs DRÉAU, Marie-Pierre ADAM, François TREUSSARD, Frédéric GROSSHANS. Et je n'oublie pas Pierre, Piernicola, Thomas, Loc...

Je souhaite également remercier nos collaborateurs extérieurs, dont les contributions ont été primordiales.

Merci Alexandre TALLAIRE et Jocelyn ACHARD pour vos diamants fabuleux.

Merci Jan MEIJER et Sébastien PEZZAGNA pour leur avoir donné cette couleur chaude et profonde, tout autant que pour vos idées qui en ont renforcé l'éclat et les perspectives.

Merci Antoine NOWODZINSKI pour avoir proposé une application concrète et valorisante, renforçant encore la préciosité de ces diamants.

Merci Yannick DUMEIGE pour avoir étendu cet éclat jusque dans l'infrarouge.

À titre plus personnel, je souhaite remercier Patricia KERSERHO pour m'avoir fait bénéficier de son expertise de l'édition scientifique. Merci Rémi CHIPAUX, mon papa, de m'avoir offert ton expérience du milieu de la recherche et de ces usages, et merci à toute ma famille pour son soutien inconditionnel tout au long de cette thèse. Ces aides m'ont été d'une valeur inestimable, en particulier pour la rédaction de ce mémoire.

Pour finir, Adeline, mon épouse, merci pour ta présence, ton soutien chaleureux, ton support quotidien... Sans tout cela, je n'aurais pu me sentir aussi heureux et libre de mener à bien ce projet exaltant.

Table des matières

Remerciements	3
Table des matières	6
Introduction	9
Chapitre I Le diamant et son centre coloré NV	11
Contenu.....	12
I.1 Le diamant, un cristal « parfait »	13
I.2 Le centre NV, un défaut cristallographique du diamant.....	13
I.3 Un centre coloré	14
I.4 Propriétés magnétiques du centre NV	18
I.5 Détection des Résonances Magnétiques par voie Optique (ODMR)	21
I.6 Application à la magnétométrie et à l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences	26
I.7 Détection des résonances magnétiques par absorption d'un faisceau sonde à 1 042 nm.....	27
Conclusion	33
Chapitre II Microscopie de photoluminescence d'une couche de centres NV	35
Contenu.....	36
II.1 Ingénierie du diamant.....	37
II.2 Un microscope de photoluminescence	47
II.3 Pompage des centres NV	52
II.4 Antenne micro-ondes, sensibilités des centres NV à un champ hyperfréquence..	56
II.5 Choix de la caméra.....	59
Conclusion	63

Chapitre III	Cartographie de champ magnétique	65
	Contenu.....	66
III.1	Acquisition d'une image de spectres ODMR	67
III.2	Position en fréquence des résonances magnétiques.....	70
III.3	Reconstruction vectorielle du champ magnétique	74
III.4	Sensibilité de la mesure du champ magnétique	79
III.5	Perspectives, application à la micro-électronique	90
	Conclusion	93
Chapitre IV	Analyse spectrale de signaux hyperfréquences.....	95
	Contenu.....	96
IV.1	Enjeux.....	97
IV.2	Principe général de la mesure	98
IV.3	Configuration expérimentale	98
IV.4	Spectre d'un signal hyperfréquence modulé en amplitude	103
IV.5	Analyse de spectres en temps réel.....	107
IV.6	Performances du système	109
	Conclusion	112
Conclusions et Perspectives		113
Annexes.....		115
	Contenu.....	115
A.	Microscopie confocale.....	116
B.	Interférométrie de Hanbury Brown et Twiss.....	120
C.	Modélisation du centre NV.....	122
Bibliographie		135
Résumé.....		142
Summary		142

Introduction

La cartographie de champ magnétique aux petites échelles est un enjeu important dans plusieurs domaines de la recherche scientifique. En effet, des domaines de recherche aussi variés que la spintronique [1], le nanomagnétisme [2] mais également la biologie cellulaire [3] ou la biologie du cerveau [4] requièrent une haute sensibilité au champ magnétique (jusqu'au $\text{fT}/\sqrt{\text{Hz}}$) associée à une importante résolution spatiale (jusqu'au nm).

Pour répondre à cette problématique, d'importants progrès ont récemment été obtenus dans plusieurs techniques de magnétométrie [5], telles que les SQUID (*Superconducting Quantum Interference Devices*) [6], les MRFM (*Magnetic Resonance Force Microscopy*) [7, 8], les sondes magnétiques à effet Hall [9], les magnétomètres à vapeur atomique [10], les condensats de Bose-Einstein [11], etc.

Ces dernières années, une nouvelle génération de magnétomètres est apparue, recourant à un objet quantique original : le défaut cristallographique azote-lacune du diamant [12, 13]. En particulier, la réalisation de magnétomètres utilisant un défaut azote-lacune unique au sein d'un diamant de taille nanométrique a permis des contributions originales dans le domaine du nanomagnétisme [14, 15, 16]. Ces travaux révèlent la pertinence de la méthode, par des mesures à la fois sensibles, quantitatives et non perturbatives, associées à une résolution spatiale nanométrique.

Ce centre coloré azote-lacune, dénommé centre NV (*Nitrogen-Vacancy*), intéresse la communauté scientifique depuis la fin des années 1990 [17]. Cet objet quantique, que l'on peut isoler à l'échelle individuelle [18, 19], possède en effet des propriétés de photoluminescence remarquables, ce qui a d'abord conduit à l'utiliser en tant que source de photons uniques pour la cryptographie quantique [20] ou, ultérieurement, comme marqueur biologique [21]. Par ailleurs, ce défaut possède une structure électronique qui lui confère des propriétés de spin en faisant un bon candidat pour des applications d'informations quantiques [22], en tant que référence temporelle [23] ou capteur de champ magnétique. Inédites dans un système état solide et accessibles à température ambiante, ces propriétés permettent d'étudier ce centre à l'aide de dispositifs expérimentaux simples, ce qui laisse entrevoir des applications industrielles.

Dans le cadre de cette thèse, menée principalement dans le laboratoire de recherche du groupe Thales : *Thales Research & Technology*, sous l'encadrement de Thierry Debuisschert, en collaboration avec l'équipe de Jean-François Roch et Vincent

Jacques du Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire (LPQM)¹, nous nous sommes d'abord intéressés aux centres NV pour la mesure de champs magnétiques.

L'objectif initial était de concevoir et réaliser une expérience de magnétométrie utilisant non plus un centre NV unique, mais un ensemble [24, 25, 26], ce qui offre la possibilité de réaliser une image complète du champ magnétique d'un échantillon d'intérêt sans le « scanner », c'est-à-dire sans déplacer un centre NV unique pas à pas, par rapport à celui-ci. Cette possibilité d'acquérir une cartographie complète du champ magnétique en une unique mesure s'avère potentiellement de grand intérêt pour les domaines où la résolution temporelle est importante [4]. De plus, l'utilisation d'un ensemble de centres NV permet d'augmenter la quantité de signal détecté, et améliore ainsi la sensibilité en champ magnétique.

L'objet de ce mémoire est de montrer que les performances d'un tel dispositif, associées à une relative simplicité expérimentale, permettent d'envisager des applications dans le domaine industriel, d'une part, comme la détection de défauts dans les circuits électroniques par exemple, et dans plusieurs domaines de la recherche scientifique, d'autre part, en spintronique ou dans le domaine du magnétisme par exemple.

Par la suite, nous étudions une autre application originale des ensembles de centres NV dans le même dispositif expérimental : l'analyse de spectres de signaux dans le domaine hyperfréquence. Ce champ d'application est d'un intérêt industriel majeur, notamment dans une perspective de traitement de signaux radars.

Dans le [Chapitre I](#), nous présentons le centre NV dans son matériau-hôte, le diamant, et nous détaillons les propriétés fondamentales qui permettent de l'utiliser comme capteur de champ magnétique ou de champ hyperfréquence. Dans le [Chapitre II](#), nous précisons le dispositif expérimental que nous avons conçu et utilisé pour les deux applications spécifiques que nous avons explorées au cours de cette thèse.

La première, la cartographie de champ magnétique à l'échelle micrométrique, est présentée [Chapitre III](#). Nous en détaillons le principe d'acquisition et de traitement des données et montrons, en exemple, la reconstitution des trois composantes d'espace du champ magnétique généré par une source de référence, dans le plan correspondant à l'image analysée.

La seconde application, l'analyse de spectres de signaux hyperfréquence, est présentée [Chapitre IV](#). Nous détaillons la méthode qui permet de mesurer le spectre d'un signal électrique hyperfréquence, c'est-à-dire d'en déterminer les fréquences instantanées.

Finalement, nous concluons sur les perspectives qu'offre ce travail, à la fois sur le plan scientifique et sur le plan des applications.

¹ L'équipe du LPQM, de Jean-François Roch et Vincent Jacques a depuis déménagé au Laboratoire Aimé Cotton (LAC).

Chapitre I

Le diamant et son centre coloré NV

Dans ce chapitre, nous introduisons le centre NV et montrons qu'il peut être utilisé comme capteur de champs magnétiques et de champs électromagnétiques hyperfréquences. Après avoir rappelé les propriétés du diamant essentielles pour ces applications (*cf.* § I.1), nous décrivons le centre NV du diamant (*cf.* § I.2) et présentons les propriétés optiques (*cf.* § I.3) et magnétiques (*cf.* § I.4) qui mènent à la possibilité de détecter des résonances magnétiques par voie Optique (ODMR : *Optically detected Magnetic Resonance*) (*cf.* § I.5). Puis nous illustrons comment cette propriété permet d'envisager l'utilisation du centre NV comme un capteur (*cf.* § I.6). Enfin nous détaillons une méthode utilisant une cavité optique permettant de mettre à profit la transition à 1 042 nm du centre NV récemment découverte et d'augmenter le contraste des raies de résonances de manière significative (*cf.* § I.7).

Contenu

I.1	Le diamant, un cristal « parfait »	13
I.2	Le centre NV, un défaut cristallographique du diamant.....	13
I.3	Un centre coloré	14
I.3.1	Cycle absorption / émission.....	14
I.3.2	Source de photons uniques.....	16
I.3.3	Saturation optique.....	16
I.4	Propriétés magnétiques du centre NV	18
I.4.1	États triplets.....	18
I.4.2	Détection de l'état de spin du système, polarisation dans l'état de spin nul	20
I.5	Détection des Résonances Magnétiques par voie Optique (ODMR)	21
I.5.1	Principe général.....	21
I.5.2	Contraste des résonances magnétiques.....	22
I.5.3	Profil des résonances magnétiques	23
I.6	Application à la magnéto­métrie et à l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences	26
I.6.1	Magnéto­métrie.....	26
I.6.2	Analyse de spectres de signaux hyperfréquences	27
I.7	Détection des résonances magnétiques par absorption d'un faisceau sonde à 1 042 nm.....	27
I.7.1	Diagramme électronique	27
I.7.2	Configuration simple passage.....	28
I.7.3	Mise en cavité, couplage critique.....	30
	Conclusion.....	33

I.1 Le diamant, un cristal « parfait »

Le diamant est une forme allotropique du carbone. C'est un cristal covalent à trois dimensions (contrairement au graphène, lequel est à deux dimensions), dont la principale caractéristique est la force de ses liaisons². De ce fait, le diamant est un matériau d'une dureté exceptionnelle. De plus, le coût énergétique de l'introduction de défauts en son sein est tel que selon le mode de fabrication, le diamant peut être considéré comme exempt de tous défauts cristallins sur des volumes microscopiques. De tels diamants, dits ultrapurs, sont donc de parfaits isolants électriques³, en dépit de leur très bonne conductivité thermique. Ces propriétés remarquables font du diamant un excellent candidat pour de multiples applications, telles que l'électronique de puissance [27, 28], l'optique quantique et l'optique non linéaire [29, 30]. Aussi, le carbone étant parfaitement biocompatible [21], le diamant trouve également des applications en biologie [31, 32].

Par ailleurs, le diamant est transparent depuis le visible jusqu'à l'ultraviolet lointain. Il possède un indice optique élevé ($n_{Dia} = 2,4$). Seule l'inclusion d'impuretés formant des défauts lui confère des propriétés d'absorption et de photoluminescence [33]. À ce jour, plusieurs centaines de centres colorés du diamant ont été répertoriés, pour lesquels les propriétés d'absorption et d'émission vont depuis l'infrarouge jusqu'à l'ultraviolet.

Comme nous le verrons par la suite, ces propriétés optiques associées à une telle pureté chimique sont déterminantes pour nos applications.

I.2 Le centre NV, un défaut cristallographique du diamant

Dans cette thèse, nous nous intéressons plus particulièrement à l'un de ces centres colorés : le centre NV. Dans la matrice du diamant présentée [Figure I.1.a](#), un atome d'azote N (*Nitrogen*) est substitué à un atome de carbone, tandis que sur l'un des quatre sites adjacents, un atome de carbone est manquant, constituant une lacune V (*Vacancy*). L'ensemble « azote et lacune » constitue le centre NV (*Nitrogen-Vacancy*) [34], que nous présentons [Figure I.1.b](#). Notons que l'axe ($N - V$) correspond à l'un des quatre axes de symétrie C_3 du diamant. La présence de cet axe orienté réduit la symétrie du système de T_d (tétraédrique) à C_{3v} .

Le centre NV peut exister sous différents états de charge. La forme neutre, NV^0 , possède un électron célibataire, qui n'est impliqué ni dans une liaison chimique ni dans un doublet non liant associé à un atome. La forme chargée négativement, NV^- , possède deux électrons libres. Ces électrons peuvent subir des transitions optiques. Ils confèrent des propriétés de photoluminescence à ces deux états de charge du centre NV.

² Le diamant est composé uniquement de liaisons carbone-carbone de type sp^3 .

³ Le diamant est assimilable à un semi-conducteur à grand gap (5,5 eV).

Dans la suite de ce mémoire, nous nous intéressons principalement à la forme NV^- . En effet, la présence des deux électrons libres, dont le spin total est égal à 1, apporte des propriétés physiques additionnelles remarquables, qui permettent d'envisager les applications développées dans cette thèse. Sauf mention contraire, nous noterons simplement NV l'état de charge NV^- .

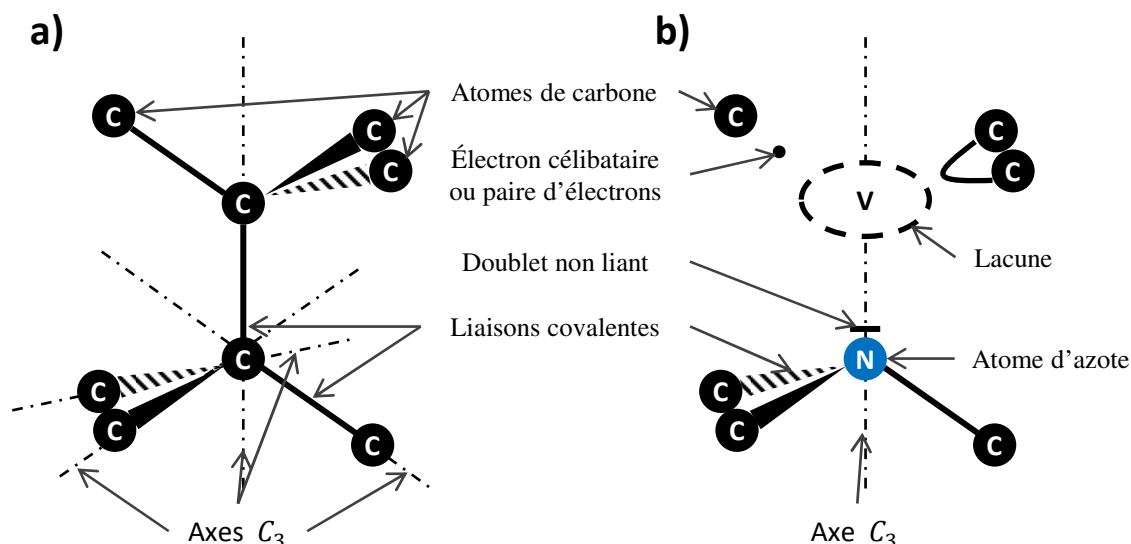


Figure I.1 : Définition du centre NV du diamant.
a) Structure cristalline du diamant. b) Le centre NV.

Nous pouvons dès à présent noter que les dimensions du centre NV sont très réduites. Les fonctions d'onde des électrons identifiés ci-dessus restent localisées autour du site cristalllographique du diamant, dont la distance caractéristique (longueur des liaisons carbone-carbone) vaut environ 150 pm.

I.3 Un centre coloré

Nous détaillons ici les propriétés de photoluminescence du centre NV^- .

I.3.1 Cycle absorption / émission

La Figure I.2.a présente le diagramme électronique simplifié : l'état fondamental $|F\rangle$ est couplé au premier état excité $|E\rangle$ par une transition dipolaire électrique, dont la raie à zéro phonon (ZPL)⁴, est située à 1,945 eV, ce qui correspond à une longueur d'onde $\lambda_{ZPL} = 638$ nm. Sous excitation optique, à température ambiante, le centre NV peut effectuer des cycles de photoluminescence entre ces deux états.

⁴ La raie à zéro phonon correspond à la transition optique seule, c'est-à-dire non accompagnée de transitions vibroniques (voir texte ci-après).

La Figure I.2.b présente les spectres d'absorption et d'émission du centre NV⁵. À température ambiante, le fort couplage avec les phonons de la matrice du diamant provoque un décalage conséquent entre les spectres d'absorption et d'émission (environ 100 nm), associé à une importante largeur spectrale (environ 100 nm également). Dans la suite de ce mémoire, sauf mention contraire, le faisceau d'excitation, appelé faisceau de pompe (cf. § I.4.2), sera à la longueur d'onde $\lambda_p = 532$ nm. Cette longueur d'onde, facilement accessible par le doublage en fréquence d'un laser Nd:Yag ou Nd:YVO₄, ne chevauche pas le spectre d'émission du centre NV, ce qui permet de séparer aisément le faisceau de pompe du signal de photoluminescence du centre NV à l'aide d'un filtre bloquant les longueurs d'ondes inférieures à 580 nm.

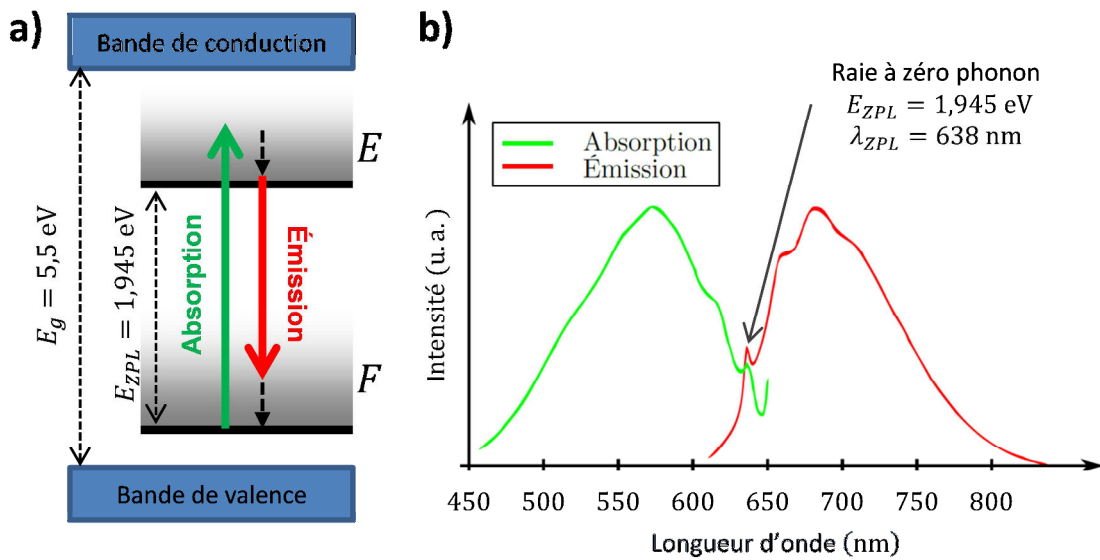


Figure I.2 : Photoluminescence.

a) Diagramme électronique simplifié du centre NV ; cycle d'absorption et d'émission de photons.

b) Spectre d'absorption et d'émission du centre NV.

Nous pouvons définir W_p , le taux de pompage du centre NV. Si n centres NV sont dans leur état fondamental, $nW_p dt$ sera le nombre de centres NV excités pendant la durée infinitésimale dt . En notant σ_p la section efficace d'absorption du centre NV à la longueur d'onde de pompe λ_p , ce taux s'exprime comme :

$$W_p = \sigma_p \cdot I_p \frac{\lambda_p}{hc}, \quad (I.1)$$

où I_p est l'intensité du faisceau auquel est soumis le centre NV, λ_p sa longueur d'onde, h la constante de Planck et c la célérité de la lumière dans le vide.

⁵ Comme mentionné précédemment, nous discutons ici du centre NV⁻. Le centre NV⁰ possède des propriétés de photoluminescence très similaires. Les spectres d'absorption et d'émission sont, à peu de choses près, translatés vers les courtes longueurs d'ondes. La raie zéro phonon est à 575 nm.

Dans ce cas, $\frac{hc}{\lambda_p}$ est l'énergie d'un photon et $I_p \frac{\lambda_p}{hc}$ est le nombre de photons présents dans le faisceau de d'excitation par unité de temps et par unité de surface. La référence [35] nous donne :

$$\sigma_p = 3 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2. \quad (I.2)$$

Cette valeur, traduisant l'importance du couplage du centre NV avec la lumière, est relativement faible. Nous verrons, [Paragraphe II.3.1](#), que cela peut requérir de fortes puissances de pompe, notamment lorsque l'on souhaite exciter simultanément un grand nombre de centres NV.

I.3.2 Source de photons uniques

Prenant acte de ces propriétés de photoluminescence, la communauté scientifique s'est tout d'abord intéressée aux centres NV en tant que sources de photons uniques [18, 20]. Piégé dans une matrice solide, un centre NV individuel peut facilement être manipulé. Par ailleurs, du fait de la dureté des liaisons covalentes du diamant, le centre NV est parfaitement stable. Il peut être étudié à l'échelle individuelle sans limite de temps et sans contrainte sur les conditions de laboratoire.

Le dispositif de microscopie confocale décrit dans l'[Annexe A](#) permet d'étudier les centres NV à l'échelle individuelle. La [Figure I.3.a](#) présente l'image de luminescence d'un centre NV unique au sein d'un diamant massif. Son unicité est démontrée par la courbe d'autocorrélation en intensité présentée [Figure I.3.b](#). Pour un émetteur unique, les photons sont émis un par un. Ainsi le délai (en abscisse) entre l'arrivée de deux photons successifs ne peut être nul. Cela se traduit, pour les délais nuls, par un taux de coïncidence (en ordonnée) approchant zéro. Nous détaillons dans l'[Annexe B](#) le principe de cette mesure, ainsi que le dispositif de Hanbury Brown et Twiss que nous avons utilisé pour celle-ci.

I.3.3 Saturation optique

Le montage de microscopie confocale permet également d'étudier la saturation optique d'un centre NV unique. La [Figure I.3.c](#) montre le signal de luminescence S , en nombre de photons par seconde, en fonction de la puissance du signal d'excitation P_p . L'intensité du signal de luminescence est obtenue en soustrayant le bruit de fond du signal mesuré au maximum du spot de luminescence (*cf.* [Fig. I.3.a](#)).

La longueur d'onde de luminescence est très différente de la longueur d'onde d'excitation, ce qui implique l'absence d'émission stimulée. Le signal émis provient uniquement de l'émission spontanée du centre NV et se révèle donc indépendant de l'intensité d'excitation, I_p .

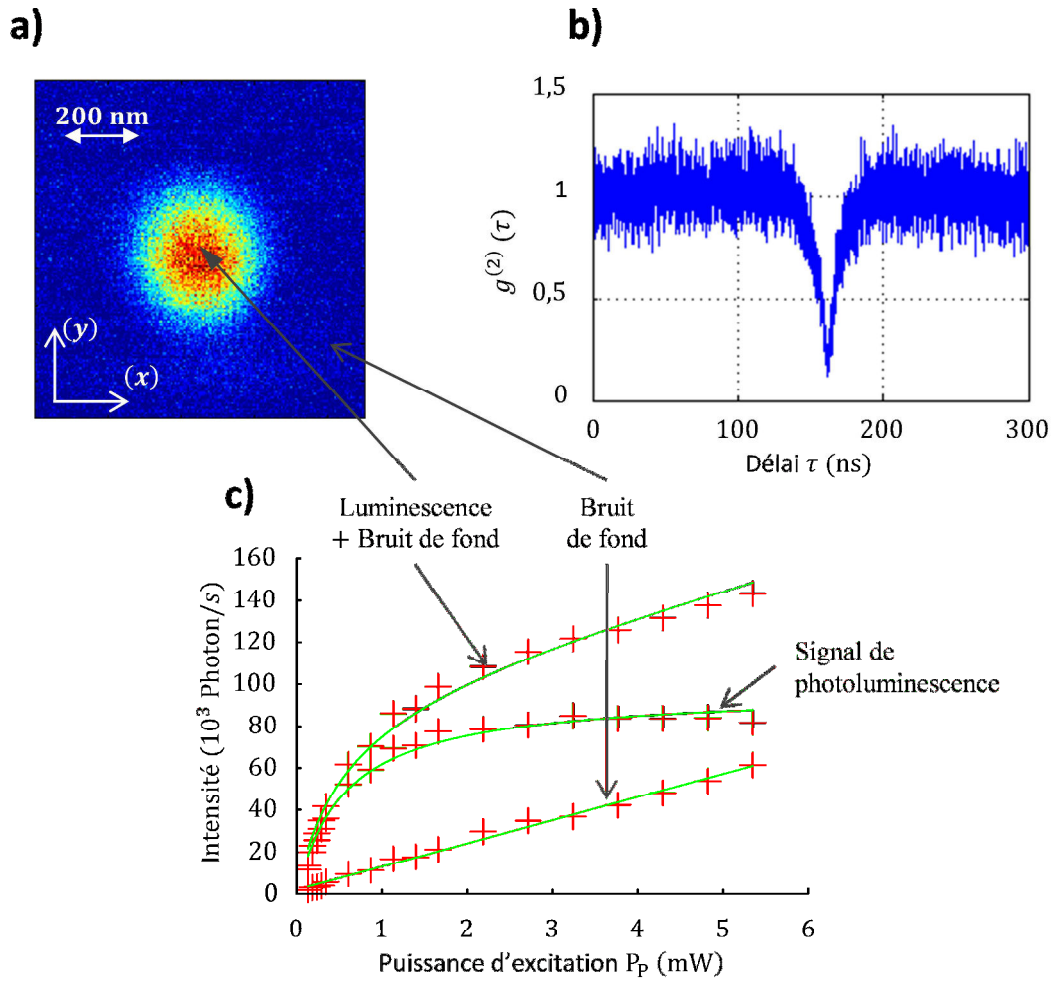


Figure I.3 : Saturation optique d'un centre NV unique.

- a)** Spot de photoluminescence d'un centre NV unique réalisé avec le microscope confocal (cf. Ann. A).
b) Courbe d'autocorrélation en intensité du centre NV observé en a). La courbe possède des valeurs inférieures à $\frac{1}{2}$: cela prouve qu'un unique centre NV est présent sur le spot d'excitation (cf. Ann. B).
c) Courbe de saturation de l'intensité de photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation du centre NV. Les croix rouges représentent les mesures effectuées, tandis que la ligne continue verte présente l'ajustement de la courbe décrite dans l'Équation (I.3).

En revanche, la probabilité de transition de l'état fondamental vers l'état excité du centre NV est proportionnelle à I_p (cf. Éq. (I.1)). Il est donc possible de réaliser un fort peuplement de l'état excité au détriment de celui de l'état fondamental. Auquel cas, l'intensité de luminescence atteint un maximum, qui correspond à la saturation optique. Cette saturation est modélisée par la courbe suivante :

$$S(P_p) = S_{\text{Max}} \cdot \frac{1}{1 + s}, \quad (\text{I.3})$$

où :

- S_{Max} est le maximum que l'intensité de luminescence S peut atteindre,
- P_{Sat} la puissance de saturation du faisceau de pompe,
- $s = P_P/P_{Sat}$ le paramètre de saturation.

L'ajustement de cette courbe sur les données [Figure I.3.c](#) donne :

$$\begin{aligned} S_{Max} &= 97 \cdot 10^3 \text{ coups/s} \\ P_{Sat} &= 0,57 \text{ mW.} \end{aligned} \quad (I.4)$$

P_{Sat} , accessible expérimentalement, dépend du profil du faisceau d'excitation. Nous calculons ci-après l'intensité de saturation, I_{Sat} , intrinsèque au centre NV. On admet que le faisceau de pompe est une gaussienne (*cf.* [Ann. A](#)) telle que son profil en intensité au niveau du foyer de l'objectif est égal à :

$$I_P(r) = I_P^0 e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}}, \quad (I.5)$$

où r est la distance radiale par rapport au centre du spot et w_0 le *waist* égal à 160 nm (*cf.* [Ann. A](#)). La puissance de pompe s'exprime alors comme :

$$P_P = \iint I_P(r) \cdot d^2s = \frac{\pi w_0^2}{2} \cdot I_P^0. \quad (I.6)$$

En particulier, nous obtenons pour l'intensité de saturation :

$$\begin{aligned} I_{Sat} &= \frac{2}{\pi w_0^2} P_{Sat} \\ I_{Sat} &\approx 14 \text{ mW} \cdot \mu\text{m}^{-2} \\ I_{Sat} &\approx 14 \text{ GW} \cdot \text{m}^{-2}. \end{aligned} \quad (I.7)$$

On a alors : $s = I_P/I_{Sat}$.

I.4 Propriétés magnétiques du centre NV

Dans ce paragraphe, nous décrivons la structure électronique du centre NV plus en détail. Ceci permet d'expliquer l'origine de la Détection des Résonances Magnétiques par voie Optique (ODMR) (*cf.* § I.5), fondamentale pour les applications développées dans cette thèse (*cf.* § I.6).

I.4.1 États triplets

La [Figure I.4.a](#) présente le diagramme énergétique détaillé du centre NV. Comme mentionné [Paragraphe I.2](#), le centre NV est un système à deux électrons possédant un spin électronique global de 1. Nous notons m_s le nombre quantique indiquant la projection de l'état de spin électronique sur l'axe de quantification du centre NV, lequel est l'axe ($N - V$) du fait des propriétés de symétrie du centre présentées [Figure I.4.b](#).

En particulier, l'état fondamental $|F\rangle$ et l'état excité $|E\rangle$ sont triplets de spin. Chacun possède trois sous-états : $|m_s = 0\rangle$, $|m_s = -1\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$.

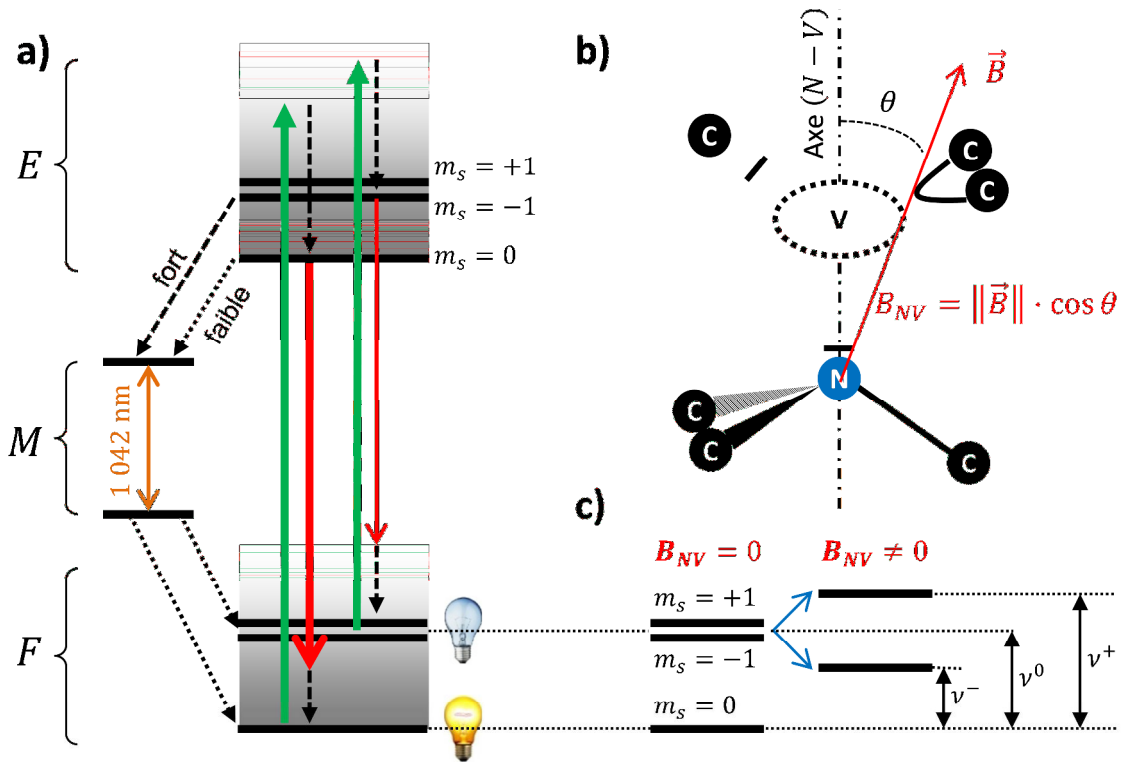


Figure I.4 : Structure électronique du centre NV.

a) Diagramme électronique du centre NV. L'état fondamental F et l'état excité E sont triplets de spin, tandis que l'état métastable M est composé de deux états singulets séparés de 1 042 nm (cf. § 1.7 & Ann. C § C.7). Les transitions optiques conservent l'état du spin. Elles sont indiquées en trait plein de couleur (vert pour l'absorption et rouge pour l'émission). La transition à 1 042 nm, au sein du niveau métastable M , est indiquée en orange. Les désexcitations non radiatives sont indiquées en pointillées. La différence relative entre l'importance de ces désexcitations non radiatives explique que les états de spin non nuls ($m_s = \pm 1$) sont plus sombres que l'état de spin nul.

b) Axe de quantification du centre NV.

c) Effet Zeeman. La présence d'un champ magnétique mène à la levée de la dégénérescence entre les états de spin $m_s = -1$ et $m_s = +1$. La différence d'énergie de ces deux états est proportionnelle à la projection du champ magnétique sur l'axe de quantification du centre NV décrit en b).

La dégénérescence entre les états de spin $|m_s = 0\rangle$ et $|m_s = \pm 1\rangle$ est levée par l'interaction spin-spin. Dans l'état fondamental, les états $|F, m_s = 0\rangle$ et $|F, m_s = \pm 1\rangle$ sont séparés de :

$$\nu_0 = 2,87 \text{ GHz.} \quad (\text{I.8})$$

Les sous-états $|m_s = -1\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$, de spins non nuls, peuvent se coupler au champ magnétique par effet Zeeman. Pour des champs magnétiques suffisamment faibles, leurs énergies sont translatées de $\pm g\mu_B \cdot B_{NV}$ selon que $m_s = \pm 1$:

$$\begin{aligned} \nu^{\pm} &= \nu^0 \pm \frac{g\mu_B}{h} \cdot B_{NV} \\ D\nu &= \nu^+ - \nu^- = 2 \cdot \frac{g\mu_B}{h} \cdot B_{NV}, \end{aligned} \quad (I.9)$$

où :

- $D\nu$ est la distance entre les états $|m_s = -1\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$,
- B_{NV} est la projection du champ magnétique sur l'axe $(N - V)$, représenté [Figure I.4.c](#),
- $g \approx 2,0$, est le facteur de Landé du centre NV,
- $\mu_B = 9,27 \cdot 10^{-24}$ J/T, est le magnéton de Bohr,
- $h = 6,62 \cdot 10^{-34}$ J/Hz, est la constante de Planck.

La grandeur $\frac{g\mu_B}{h}$ s'apparente alors au rapport gyromagnétique du centre NV et vaut :

$$\frac{g\mu_B}{h} = 28 \text{ MHz} \cdot \text{mT}^{-1}. \quad (I.10)$$

I.4.2 Détection de l'état de spin du système, polarisation dans l'état de spin nul

En accord avec les règles de sélection des transitions optiques, les transitions dipolaires électriques décrites dans le paragraphe précédent se font à spin constant. Par ailleurs, l'interaction spin-orbite est très faible dans le diamant (*cf.* § I.5.3). De sorte qu'au cours des désexcitations vibroniques, l'état de spin est conservé. À fortiori, l'état de spin est conservé sur l'ensemble du cycle de photoluminescence.

Cependant, des transferts de spin peuvent se faire par l'intermédiaire d'un état additionnel singulet, noté $|M\rangle$. Ce dernier rend possible une voie de désexcitation non radiative qui permet de changer d'état de spin de manière asymétrique. Dans l'état excité $|E\rangle$, le système présente davantage de chances de se désexciter par l'intermédiaire de $|M\rangle$ s'il est dans un état de spin $|m_s = \pm 1\rangle$ que s'il est dans l'état de spin $|m_s = 0\rangle$ (*cf.* [Ann. C \(Tabl. C.1\)](#)). Par ailleurs, la durée de vie de M est relativement longue : $T_M \approx 500$ ns. Lorsque le système empreinte cette voie de désexcitation, il reste piégé dans $|M\rangle$, dit métastable, pour une durée T_M . Ceci mène à deux propriétés importantes :

- l'état de spin peut être détecté de manière optique. Un centre NV dans l'état $|E, m_s = 0\rangle$ se désexcitera préférentiellement de manière radiative. Il pourra alors effectuer un autre cycle de luminescence. En revanche, s'il se trouve dans un état de spin $|E, m_s = \pm 1\rangle$, la probabilité d'une désexcitation non radiative *via* l'état métastable M est augmentée. Le système ne pourra alors plus émettre de photons durant T_M . De cette manière, le centre NV, soumis à une excitation optique, sera « brillant » si son état de spin est $|m_s = 0\rangle$ et « sombre » si son état de spin est $|m_s = \pm 1\rangle$;

- le centre NV peut être pompé dans un état de spin $|F, m_s = 0\rangle$. En effet, au cours des cycles de photoluminescence, les transitions $|E, m_s = \pm 1\rangle \rightarrow |F, m_s = 0\rangle$ peuvent se faire de manière probable par l'intermédiaire de la voie de désexcitation non radiative. Tandis que les transitions inverses $|E, m_s = 0\rangle \rightarrow |F, m_s = \pm 1\rangle$, sont moins probables. Après quelques cycles, le centre NV sera « polarisé » dans l'état de spin $|m_s = 0\rangle$. Ceci justifie la qualification de « faisceau de pompe » pour le faisceau d'excitation à $\lambda_p = 532$ nm.

I.5 Détection des Résonances Magnétiques par voie Optique (ODMR)

I.5.1 Principe général

La combinaison des propriétés décrites dans les paragraphes précédents permet la Détection Optique de Résonance Magnétique (ODMR) entre les différents états de spin.

Soit $|F^0\rangle = |F, m_s = 0\rangle$ (respectivement $|F^- \rangle = |F, m_s = -1\rangle$ et $|F^+ \rangle = |F, m_s = +1\rangle$) l'association de l'état fondamental $|F\rangle$ avec l'état de spin $|m_s = 0\rangle$ (respectivement $|m_s = -1\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$). Nous définissons de la même manière $|E^0\rangle$, $|E^- \rangle$ et $|E^+ \rangle$. L'état métastable est noté $|M\rangle$.

Un champ magnétique B_{MW} oscillant à la fréquence micro-onde ν peut introduire des résonances magnétiques entre les états de spin. À résonance, par exemple pour $\nu = \nu^-$, des transitions magnétiques peuvent se produire entre les états $|F^0\rangle$ et $|F^- \rangle$ ou, de manière analogue, entre les états $|F^0\rangle$ et $|F^+ \rangle$. En revanche, les transitions magnétiques entre les états $|F^- \rangle$ et $|F^+ \rangle$ sont interdites. Soit W_{MW} le taux de transition ci-introduit. En régime permanent, dans l'approximation adiabatique⁶, il s'exprime à partir du temps de déphasage T_2^* , selon :

$$W_{MW} = \frac{\Omega_R^2 \cdot T_2^*}{2} \quad \text{avec} \quad \Omega_R = \frac{g\mu_B}{\hbar} B_{MW}^0, \quad (I.11)$$

où Ω_R est la fréquence de Rabi de la transition.

En l'absence de cette résonance magnétique, le centre NV soumis à une excitation optique est polarisé dans $|F, m_s = 0\rangle$ avec un taux de de l'ordre de 80 % (cf. Ann C § C.5). Il effectue un grand nombre de cycle de photoluminescence. En revanche, à résonance, la présence de cette transition magnétique provoque un dépeuplement de l'état de spin $|m_s = 0\rangle$ brillant, au profit de l'état $|m_s = \pm 1\rangle$ plus sombre. Cela entraîne une décroissance du signal de luminescence qui permet de détecter cette résonance magnétique.

⁶ Cette approximation revient à supposer que les cohérences évoluent beaucoup plus vite que les populations et quelles sont toujours à l'équilibre.

La Figure I.5.a montre le signal de photoluminescence d'un centre NV soumis à une excitation optique et à un champ magnétique micro-onde dont la fréquence ν suit une rampe de fréquences. Si la projection B_{NV} du champ magnétique sur l'axe du centre NV est nulle, on distingue une résonance magnétique par la chute de la luminescence à la fréquence $\nu_0 = 2,87$ GHz. En revanche, dans le cas où le champ B_{NV} est non nul, la dégénérescence entre les états $|m_s = -1\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$ est levée par l'effet Zeeman. Deux résonances distinctes apparaissent aux fréquences ν^+ et ν^- , distantes de $D\nu$, et telles que les positions sont données par l'Équation (I.9), dans l'approximation des champs magnétiques suffisamment faibles [36].

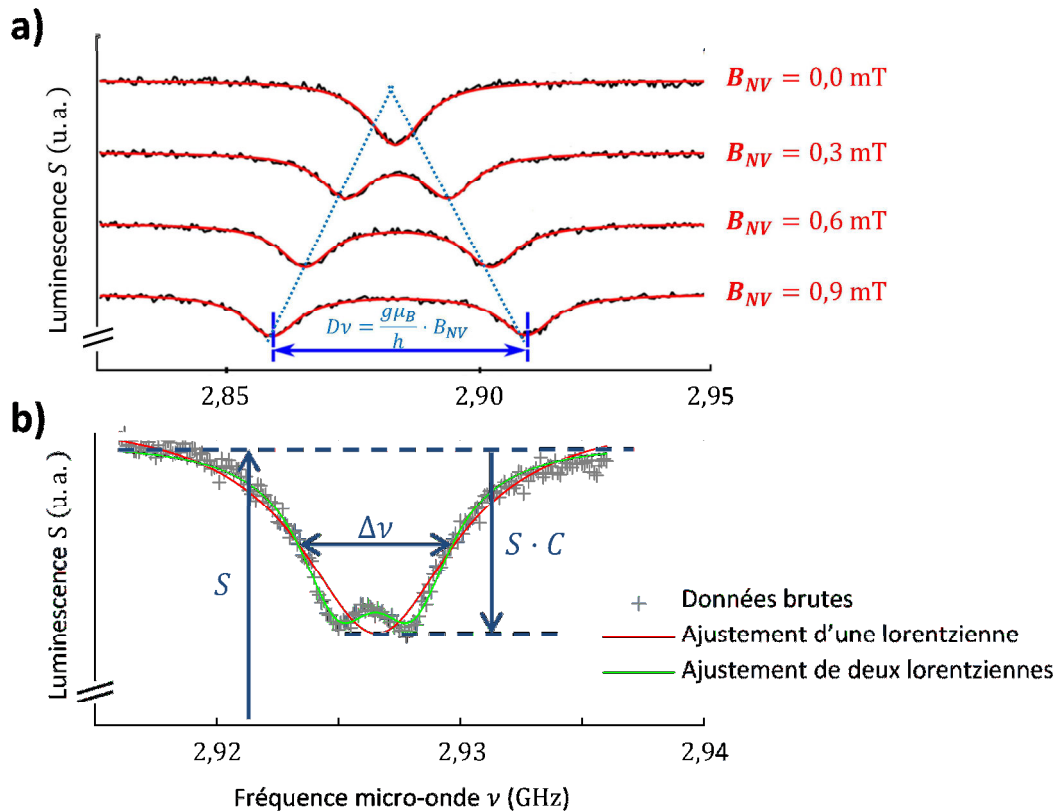


Figure I.5 : Détection optique des résonances magnétiques (ODMR).

a) Spectre ODMR d'un centre NV soumis à un champ magnétique croissant [14].

b) Zoom sur une résonance magnétique ; définition du signal S , du contraste C et de la largeur à mi-hauteur de la résonance $\Delta\nu$. Les deux pics correspondent à l'interaction hyperfine entre le spin électronique du centre NV et le spin nucléaire de l'atome d'azote ^{15}N .

I.5.2 Contraste des résonances magnétiques

La Figure I.5.b présente un zoom sur une résonance magnétique qui permet de définir les quantités utiles. Soit C le contraste de cette résonance magnétique, défini comme la variation relative du signal de luminescence S et tel que :

$$C = \frac{S(W_{MW} = 0) - S(W_{MW} \neq 0)}{S(W_{MW} = 0)}. \quad (I.12)$$

Cette quantité renseigne sur la profondeur de la résonance magnétique et donc sur notre capacité à la visualiser. Elle intervient directement dans la sensibilité de mesure du champ magnétique et dans l'analyse de spectre de signaux hyperfréquences. Dans l'[Annexe C](#), nous proposons un modèle photophysique du centre NV nous permettant de calculer ce contraste dans différentes configurations. En pratique, ce contraste est d'environ 20 % pour un centre unique [37]. Dans le cas d'un ensemble de centres NV, il est compris entre 1 et 1,5 % (*cf.* [Chap. III § III.4.4](#)).

Nous montrons [annexe C \(§ C.5\)](#) que la différence de contraste entre les expériences à centre unique et les expériences utilisant des ensembles provient essentiellement de la manière dont le centre NV est pompé. En centre unique, le faisceau de pompe peut être focalisé sur le centre NV : la saturation optique peut donc facilement être atteinte et la polarisation dans l'état de spin nul en l'absence de résonance magnétique est donc plus importante. En revanche, avec des ensembles de centres NV, la saturation optique requière des puissances de pompe que nous ne sommes pas en mesure de fournir (*cf.* [Chap. II § II.3.1](#)). Les centres NV sont moins polarisés, et les contrastes des résonances sont plus faibles. À cela s'ajoute la présence de quatre classes de centres NV, associées aux quatre directions cristallographiques du diamant (*cf.* [Chap. I § I.2](#)). Dans un champ magnétique quelconque, les résonances ne sont pas superposées (*cf.* [Chap. III § III.1.5](#)). Le contraste de chacune d'entre-elles est donc divisé par quatre.

Néanmoins, malgré la prise en compte de ces effets, le modèle de l'[annexe C](#) propose une valeur théorique maximale de contraste de 3,6 % pour les ensembles de centres NV (*cf.* [§ C.5](#)). La différence peut provenir de la photoluminescence parasite provenant de l'échantillon de diamant (des centres NV⁰ restant par exemple (*cf.* [Chap. II § II.1.4](#))) ou des approximations du modèle utilisé, la non prise en compte des phénomènes de relaxation en T_1 par exemple.

I.5.3 Profil des résonances magnétiques

Soit $\Delta\nu$ la largeur à mi-hauteur de la résonance magnétique (*cf.* [Fig. I.5.b](#)). De la même manière que pour C , cette grandeur intervient dans la sensibilité en champ magnétique et dans la résolution spectrale de l'analyse de spectres.

Dans un modèle simple [37], lorsque la fréquence micro-onde est proche d'une résonance, on modélise le centre NV par un système à deux niveaux en présence de relaxation de type équation de Bloch : le profil de raie est alors de type lorentzien. C'est pourquoi nous avons choisi ce profil pour étudier les raies mesurées expérimentalement.

Dans le cadre d'une excitation continue, ces largeurs de raies sont limitées par l'élargissement inhomogène de puissance dû au pompage optique et à l'excitation micro-onde [37]. Cependant, pour les faibles excitations optiques, l'augmentation de la

puissance de pompe permet de réduire légèrement cette largeur à mi-hauteur : c'est le phénomène de *light narrowing* [38]. Dans les configurations expérimentales développées ci-après, nous obtenons des largeurs à mi-hauteur invariablement autour de 7 MHz (*cf.* Fig. I.5.b).

Dans ces conditions, nous sommes en mesure de distinguer l'interaction hyperfine du spin électronique du centre NV avec le spin nucléaire de l'atome d'azote qui le constitue (*cf.* Fig. I.5.b). L'isotope ^{14}N (naturellement majoritaire à 99,64 %) possède un spin global égal à 1 : il provoque l'apparition de trois résonances, séparées de 2 MHz [39]. L'isotope ^{15}N possède un spin $\frac{1}{2}$: il ne provoque l'apparition que de deux résonances magnétiques de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu_1$, séparées de $\nu_{Hyp} = 3$ MHz [39]. De ce fait, en utilisant préférentiellement cet isotope, on peut gagner légèrement sur la largeur à mi-hauteur totale $\Delta\nu = \Delta\nu_1 + \nu_{Hyp}$, et distinguer ainsi les centres NV naturels du diamant, (majoritairement constitués de ^{14}N), des centres NV artificiels, (constitués de ^{15}N). Cette interaction hyperfine explique également la très faible variation de la largeur à mi-hauteur des résonances observées en fonction des conditions expérimentales. N'étant pas en mesure de résoudre cette interaction hyperfine (*cf.* Fig. I.5.b), la largeur à mi-hauteur de la résonance globale reste minorée par celle-ci.

Afin de s'affranchir de cet élargissement inhomogène de puissance, le centre NV doit être laissé libre d'évoluer en l'absence d'irradiation lumineuse ou hyperfréquence. Pour cela, des protocoles de mesures pulsées, inspirées des techniques de résonance magnétique nucléaire (RMN), ont été proposés [37, 13]. De cette manière, les temps de cohérence des centres NV du diamant peuvent être mesurés [40].

L'interaction spin-orbite dans le diamant étant très faible, la décohérence du spin électronique du centre NV n'est induite que par la présence des spins résiduels dans le diamant, à basse température comme à température ambiante. Comme nous l'avons précisé [Paragraphe I.1](#), les diamants artificiels CVD peuvent être pratiquement exempts de toute impureté et, à fortiori, de tous spins parasites. De cette manière, le centre NV est presque isolé et peut présenter des temps de cohérence T_2^* de l'ordre de la demi-milliseconde. La [Figure I.6](#) est extraite de l'article de revue [41] sur la magnéto-métrie à centre NV. Elle donne les temps de cohérence d'un centre NV unique en fonction du substrat de diamant dont il est issu.

HPHT $[N] \sim 100 \text{ ppm}$ $[^{13}\text{C}] = 1.1\%$		$T_2^* \sim 0.1 \mu\text{s}$ $\eta_{dc} \approx 1.5 \mu\text{T.Hz}^{-1/2}$ $T_{2,\text{echo}} \sim 1 \mu\text{s}$ $\eta_{ac} \approx 500 \text{ nT.Hz}^{-1/2}$
CVD $[N] < 1 \text{ ppb}$ $[^{13}\text{C}] = 1.1\%$		$T_2^* \sim 3 \mu\text{s}$ $\eta_{dc} \approx 300 \text{ nT.Hz}^{-1/2}$ $T_{2,\text{echo}} \sim 300 \mu\text{s}$ $\eta_{ac} \approx 30 \text{ nT.Hz}^{-1/2}$
^{12}C purified CVD $[N] < 1 \text{ ppb}$ $[^{13}\text{C}] < 0.01\%$		$T_2^* \sim 100 \mu\text{s}$ $\eta_{dc} \approx 50 \text{ nT.Hz}^{-1/2}$ $T_{2,\text{echo}} \sim 2 \text{ ms}$ $\eta_{ac} \approx 10 \text{ nT.Hz}^{-1/2}$

Figure I.6 : Temps de cohérence d'un centre NV unique dans des diamants de différentes puretés.

Le spin du centre NV (flèches bleues) est entouré des spins électroniques des impuretés d'azotes (flèches rouges) et des spins nucléaires des atomes de carbone 13 (flèches grises).

Le temps de cohérence $T_{2,\text{echo}}$ est mesuré par une technique d'écho de spin [13].

Les grandeurs η_{dc} et η_{ac} représentent les sensibilités magnétiques selon [13] que l'on peut obtenir avec ces centres NV uniques, en régime permanent (dc) ou alternatif (ac).

Un diamant de type HPHT (*High Pressure High Temperature*) (*cf. Chap. II § II.1*) possède une grande quantité d'impuretés d'atomes d'azote dont le spin électronique est $\frac{1}{2}$. Ce « bain de spin » limite la cohérence du centre NV à un T_2^* de $0,1 \mu\text{s}$ [42]. Pour un diamant de type CVD ultrapur (*cf. Chap. II § II.1*), les impuretés d'azote sont pratiquement absentes. Le bain de spin limitant est alors constitué des atomes de carbone 13. En effet, cet isotope possède un spin nucléaire et constitue naturellement environ 1 % des atomes d'azote du diamant. Dans ce cas, les temps de cohérence sont plus longs : $T_2^* \approx 3 \mu\text{s}$ [43]. Pour dépasser cette limite, des méthodes permettent de fabriquer du diamant constitué presque exclusivement de carbone 12 amagnétiques [44]. Dans ce cas, les temps de cohérence des centres NV sont encore augmentés : $T_2^* \approx 100 \mu\text{s}$. Enfin, la technique d'écho de spin [13] permet de compenser une partie de la décohérence naturelle des centres NV. Le temps de cohérence obtenu, noté T_2 , est donc plus long que le T_2^* . Dans le cas de diamant enrichi en carbone 12, le T_2 vaut environ 2 ms. D'autres techniques de découplage dynamique plus sophistiquées permettent d'aller plus loin dans l'augmentation des temps de cohérence des centres NV [45].

I.6 Application à la magnétométrie et à l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences

Dans ce paragraphe, nous présentons les principes généraux permettant de mettre à profit les propriétés précédemment décrites pour la mesure de champ magnétique et pour l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences.

I.6.1 Magnétométrie

Comme mentionné [paragraphe I.5](#), un champ hyperfréquence permet d'induire des résonances magnétiques au sein du centre NV, lesquelles peuvent être détectées par voie optique, d'une part, et dont la position en fréquence dépend linéairement du champ magnétique auquel est soumis le centre NV, d'autre part. De cette manière, en soumettant le centre NV à un signal dont on connaît la fréquence, on est en mesure de déterminer ces fréquences de résonance. [L'Équation \(I.9\)](#) nous permet alors de remonter au champ magnétique [13, 12].

Comme indiqué [Paragraphe I.2](#), le centre NV est de dimensions très réduites. Ainsi, l'utilisation d'un centre unique permet de réaliser des images magnétiques à résolution nanométrique, en le déplaçant pas à pas par rapport à l'échantillon magnétique d'intérêt, tout en identifiant, pour chaque pas, la position des résonances magnétiques. Expérimentalement, les déplacements nanométriques sont effectués par un microscope à force atomique (AFM), en y plaçant le centre NV unique au sein d'un nanodiamant [46] ou d'un diamant massif structuré à l'échelle nanométrique [16]. Une seconde solution consiste à utiliser un centre NV fixe dans un diamant massif et à déplacer l'échantillon magnétique d'intérêt placé sur la pointe de l'AFM [47]. Avec une excitation optique et hyperfréquence entièrement continue, une résolution de 50 nm a été démontrée, associée à une sensibilité d'environ $10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ [46].

Cette sensibilité est notamment limitée par la quantité de photoluminescence que l'on peut collecter. L'utilisation d'un ensemble de centres NV doit permettre d'augmenter cette quantité et d'améliorer la sensibilité. Par exemple, une fine couche de centres NV, répartis en deux dimensions à la surface d'un diamant massif, placée au voisinage d'un échantillon magnétique d'intérêt, sera soumise à un champ magnétique dépendant de la position sur cette surface. Un champ micro-onde, généré par un synthétiseur hyperfréquence associé à une antenne, provoque des résonances magnétiques dont les fréquences dépendent de la position sur la surface. Le pompage de la couche de centres NV par un faisceau de grand diamètre (adapté aux dimensions de la surface que l'on souhaite étudier) permet de détecter les résonances magnétiques en chaque point, grâce à un microscope de photoluminescence, et d'en déterminer les positions en fréquence. De cette manière, une image du champ magnétique peut être obtenue directement, sans avoir à « scanner » l'échantillon d'intérêt [24, 25, 26]. Ceci permet des acquisitions plus rapides qu'avec les techniques à centre unique. On peut

alors obtenir une cartographie de champ magnétique dont la résolution sera limitée par la diffraction optique.

Le [Chapitre III](#) sera consacré à l'étude d'un tel instrument de cartographie de champs magnétiques.

I.6.2 Analyse de spectres de signaux hyperfréquences

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à une utilisation originale des centres NV, inversant le processus de mesure décrit [paragraphe I.6.1](#).

Il a été montré [Paragraphe I.5](#) que l'on peut détecter les résonances magnétiques générées par un champ hyperfréquence. En cela, le centre NV s'avère être un capteur de champs hyperfréquences.

Comme pour la cartographie de champ magnétique, l'idée consiste à soumettre une couche de centres NV à un pompage optique, à une excitation hyperfréquence et à un champ magnétique. Mais dans ce cas, on utilise un champ magnétique connu à priori, variable dans l'espace selon une direction donnée. Les fréquences des résonances magnétiques dépendent de la position dans ce gradient. De ce fait, la position spatiale d'une résonance magnétique le long de ce gradient, détectée par une chute de la luminescence, renseigne directement sur la fréquence de la radiation qui lui a donnée naissance.

I.7 Détection des résonances magnétiques par absorption d'un faisceau sonde à 1 042 nm

Des études plus fines sur la structure électronique du centre NV ont montré l'existence d'une transition infrarouge à 1 042 nm qui peut être utilisée en émission [48] et en absorption [49]. Dans ce paragraphe, nous utilisons cette transition pour des applications de magnétométrie. En particulier, nous proposons l'emploi d'une cavité résonante à cette longueur d'onde pour exalter l'absorption de photons. Nous montrons que cela peut permettre une augmentation substantielle du contraste de la détection des résonances magnétiques par rapport à la détection par la réduction de la photoluminescence, décrite [Paragraphe I.5](#), ainsi que de la sensibilité à un champ magnétique. Ces travaux, qui ont été menés en étroite collaboration avec Yannick Dumeige du Laboratoire FOTON, à Lannion, ont conduit à une publication [50].

I.7.1 Diagramme électronique

Nous nous intéressons ici plus particulièrement à l'état métastable $|M\rangle$ décrit [Paragraphe I.4](#). En effet, ce niveau regroupe en réalité deux niveaux singulets responsables de la transition infrarouge. Cette transition est représentée en orange [Figure I.4.a](#). Soit $|M_H\rangle$ (Haut) et $|M_B\rangle$ (Bas) ces deux niveaux et $\lambda_S = 1\,042\text{ nm}$ la

longueur d'onde à zéro phonon de cette transition. Contrairement aux transitions dans le visible décrites précédemment, le couplage avec le réseau est beaucoup plus faible, de sorte que la transition infrarouge est relativement fine à température ambiante : environ 1 nm [49]. L'ajout d'un faisceau sonde d'intensité I_S à la longueur d'onde λ_S introduit des transitions additionnelles entre ces niveaux : absorption et émission stimulée. Soit W_S le taux de ces transitions. Il s'exprime en fonction de la section efficace σ_S de cette transition selon :

$$W_S = \sigma_S \cdot I_S \frac{\lambda_S}{hc}. \quad (I.13)$$

Nous notons n_B la population du niveau $|M_B\rangle$ et n_H la population du niveau $|M_H\rangle$. L'Annexe C (§ C.7) détaille l'évolution des populations du centre NV prenant en compte cette transition.

I.7.2 Configuration simple passage

Ici, nous proposons de détecter les résonances magnétiques par les variations d'absorption d'un faisceau sonde traversant les centres NV. Comme décrit [Paragraphe I.5](#), en présence d'une excitation à λ_p , les résonances magnétiques, entre les niveaux $|F^0\rangle$ et $|F^-\rangle$ par exemple, provoquent une augmentation du taux de désexcitation non radiative qui se traduit par une diminution du peuplement de l'état excité au profit d'une augmentation de l'état métastable. La chute de la photoluminescence s'accompagne donc d'une augmentation de l'absorption infrarouge [49].

Dans le cadre d'une configuration « simple passage », décrite [Figure I.7](#), l'évolution de l'intensité du faisceau sonde $I_S(z)$ au sein du diamant, le long de son axe s'écrit :

$$\frac{dI_S(z)}{dz} = -[\sigma_S(n_B(z) - n_H(z)) + \alpha_S] I_S(z), \quad (I.14)$$

où σ_S est la section efficace d'absorption du centre NV pour cette transition et α_S une absorption parasite éventuelle, indépendante de $n_B(z) - n_H(z)$.

Pour la suite, nous nous plaçons dans l'approximation où l'intensité au sein du diamant $I_S(z)$ est très faible devant l'intensité de saturation de la transition, de sorte que $n_H \approx 0$. De cette manière, sur l'ensemble de la longueur L :

$$n_B - n_H = n_B = n_M \quad (I.15)$$

et :

$$I_S^{Out} = I_S^{In} e^{-[\sigma_S n_M + \alpha_S] L}, \quad (I.16)$$

où $I_S^{Out} = I_S(z = L)$ et $I_S^{In} = I_S(z = 0)$. Ceci nous permet de découpler les équations liées à la cavité du modèle électrodynamique du centre NV présenté [Annexe C](#). Nous nous plaçons également dans l'approximation de faibles absorptions : $[\sigma_S n_B + \alpha_S] L \ll 1$. Du fait des très faibles valeurs de la section efficace de la transition σ_S et de l'absorption parasite α_S (*cf.* [Tabl. II.1](#)), cette configuration est facilement atteinte en pratique [51]. On obtient alors :

$$I_S^{out} = I_S^{in} [1 - (\sigma_S n_M + \alpha_S) L]. \quad (I.17)$$

Dans ce cas, l'intensité de sortie de la sonde I_S^{out} dépend de la présence de la résonance micro-onde W_{MW} , par l'intermédiaire de la variable n_B . Nous pouvons alors définir un contraste pour cette résonance magnétique :

$$C = \frac{I_S^{out}(W_{MW} = 0) - I_S^{out}(W_{MW} \neq 0)}{I_S^{out}(W_{MW} = 0)}. \quad (I.18)$$

Nous obtenons :

$$C = \frac{\sigma_S L (n_M(W_{MW} \neq 0) - n_M(W_{MW} = 0))}{[1 - (\sigma_S n_M(W_{MW} = 0) + \alpha_S) L]}, \quad (I.19)$$

soit, à l'ordre 1 en $\sigma_S n_M L$ et $\alpha_S L$:

$$C = \sigma_S L (n_M(W_{MW} \neq 0) - n_M(W_{MW} = 0)). \quad (I.20)$$

Du fait de la très faible valeur de $\sigma_S n_M L$, ce contraste reste très faible. Dans la configuration expérimentale de l'article [51], il vaut environ 0,3 %. Le modèle présenté [Annexe C](#) permet de calculer les valeurs de n_M dans les mêmes conditions expérimentales. L'Équation (I.20) permet donc de calculer la section efficace du centre NV pour cette transition [50]. On obtient :

$$\sigma_S = (2,0 \pm 0,3) \cdot 10^{22} \text{ m}^2. \quad (I.21)$$

Comme nous l'avons estimé, cette valeur est très faible : elle correspond à une intensité de saturation de 500 GW. m⁻². De cette manière, l'hypothèse selon laquelle l'intensité de sonde est faible devant cette grandeur est facilement réalisable en simple passage. Dans ce calcul, l'absorption parasite α_S est mal maîtrisée. On suppose que sa valeur est située entre 0 et 10 cm⁻¹. Il en résulte une incertitude sur σ_S de $\pm 0,3 \cdot 10^{22} \text{ m}^2$.

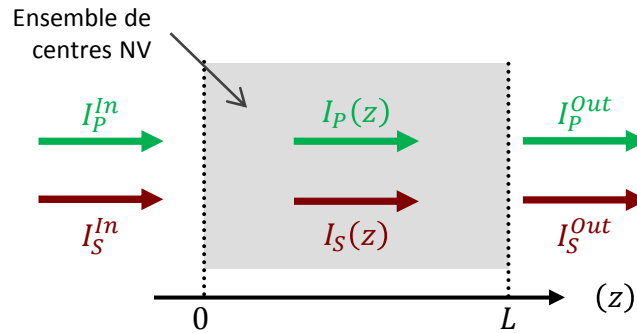


Figure I.7 : Détection des résonances magnétiques par absorption infrarouge simple passage.

Le diamant contenant des centres NV est représenté en gris. Il est traversé par le faisceau de pompe et de sonde dans la direction (z).

Les intensités de la pompe (et de la sonde) sont représentées à l'entrée I_P^{in} (I_S^{in}), à l'intérieur $I_P(z)$ ($I_S(z)$) et à la sortie I_P^{out} (I_S^{out}).

I.7.3 Mise en cavité, couplage critique

I.7.3.1 Principe général

Afin d'améliorer ce contraste, malgré la faiblesse de la section efficace du centre NV à cette longueur d'onde, nous proposons de placer l'échantillon de diamant au sein d'une cavité résonante à λ_s . Une cavité de finesse F correspond à F cycles du faisceau sonde dans la cavité avant de ressortir, c'est-à-dire à une traversée d'une longueur de diamant équivalente à $2FL$.

Plus particulièrement, nous étudions la configuration présentée Figure I.8. La cavité contenant les centres NV est délimitée par un miroir partiellement réfléchissant, dont le coefficient de réflexion en amplitude est noté r_s^0 pour la sonde et r_p^0 pour la pompe, et d'un second miroir, dont les coefficients de réflexion sont égaux à 1. Dans cette configuration, la cavité est également résonante pour le faisceau de pompe. Cela permet de pomper efficacement les centres NV avec une puissance de pompe incidente de moindre puissance.

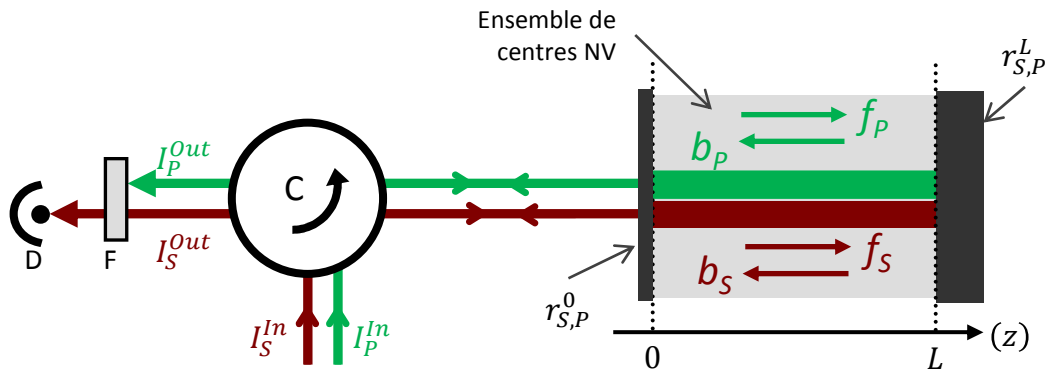


Figure I.8 : Détection des résonances magnétiques par absorption infrarouge à passages multiples.

Le diamant contenant des centres NV (en gris) est placé dans une cavité doublement résonante à la longueur d'onde de pompe $\lambda_p = 532$ nm et à la longueur d'onde de sonde $\lambda_s = 1\,042$ nm.

La cavité est délimitée par son miroir d'entrée $r_{S,P}^0$, partiellement réfléchissant pour la pompe P et pour la sonde S , et par un miroir conventionnel $r_{S,P}^L$.

Un circulateur C permet d'isoler le signal de sortie $I_{S,P}^{Out}$ du signal d'entrée. Les ondes intra-cavités, propagatrices $f_{S,P}$ et contre-propagatrices $b_{S,P}$ sont également représentées.

I.7.3.2 Coefficient de réflexion de la cavité

Intéressons-nous plus en détail à la cavité pour le faisceau sonde. L'intensité I_s^{Out} , (associée à l'amplitude électrique E_s^{Out}) que l'on peut mesurer en sortie de cavité, provient de l'interférence entre la réflexion du faisceau incident sur le miroir d'entrée et la transmission du faisceau intra-cavité par le même miroir (cf. Fig. I.8).

On a donc :

$$E_S^{out} = r_S^0 E_S^{In} e^{i\pi} + t_S^0 b_S(z=0), \quad (I.22)$$

où :

- $b_S(z=0)$ est l'amplitude du champ électrique de l'onde retour pris au niveau du miroir semi-réfléchissant (cf. Fig. I.8) ;
- t_S^0 est le coefficient de transmission du miroir semi réfléchissant.

Si on note :

- ϕ le déphasage pris accumulé dans un cycle de la cavité ;
- $\alpha = (\sigma_S n_M + \alpha_S)L$ l'absorption totale simple passage en intensité de la cavité, l'absorption en amplitude vaut $\alpha/2$ pour un simple passage, et de nouveau α pour un aller-retour soit l'absorption totale de la cavité. La propagation au sein de la cavité permet de donner l'amplitude de l'onde retour en fonction de l'onde aller :

$$b_S(z=0) = f_S(z=0) e^{i\phi} e^{-\alpha} \quad (I.23)$$

où f_S est l'amplitude de l'onde allée (cf. Fig. I.8) que nous pouvons exprimer à partir de l'onde incidente :

$$f_S(z=0) = t_S^0 E_S^{In} + r_S^0 b_S(z=0) e^{i\pi} \quad (I.24)$$

La combinaison des Équations (I.27), (I.28) et (I.29) permet d'éliminer $f_S(z=0)$ et $b_S(z=0)$. On obtient :

$$\frac{E_S^{out}}{E_S^{In}} = \frac{r_S^0 - e^{i\phi} e^{-\alpha}}{1 - r_S^0 e^{i\phi} e^{-\alpha}}. \quad (I.25)$$

Nous nous plaçons à résonance : le déphasage accumulé dans la cavité est multiple de 2π . On a donc $e^{i\phi} = 1$. Le coefficient de réflexion en intensité de la cavité s'écrit :

$$R_{cav} = \left| \frac{E_S^{out}}{E_S^{In}} \right|^2 \quad (I.26)$$

$$R_{cav} = \left(\frac{r_S^0 - e^{-\alpha}}{1 - r_S^0 e^{-\alpha}} \right)^2.$$

On note $\epsilon = 1 - r_S^L$. Dans le cas où α et ϵ sont petits devant l'unité, la réflexion de la cavité s'écrit, à partir de l'Équation (I.26) :

$$R_{cav} = \left(\frac{\epsilon - \alpha}{\epsilon + \alpha} \right)^2. \quad (I.27)$$

Nous pouvons constater ici que le coefficient de réflexion R_{cav} peut-être nul pour $\alpha = \epsilon$. C'est le couplage critique. Dans ce cas, l'interférence de la réflexion de l'onde incidente sur le miroir semi-réfléchissant avec la transmission de l'onde intracavité par ce même miroir est destructive.

I.7.3.3 Couplage critique, Sensibilité à un champ magnétique statique

Nous pouvons calculer la sensibilité magnétique η_{cav} telle que proposée Chapitre III (§ III.4.4) :

$$\eta_{cav} = p_f \cdot \frac{h}{g\mu_B} \cdot \frac{\Delta\nu}{C \cdot S/N} \cdot \sqrt{T}, \quad (I.28)$$

où :

- T est le temps d'acquisition ;
- S/N le rapport signal à bruit pour ce temps d'acquisition ;
- $p_f = 0,77$, un facteur dépendant du profil de la résonance.

Cette quantité, en T/\sqrt{Hz} donne le plus petit champ que le magnétomètre peut détecter en 1 s. Les performances sont d'autant meilleures que sa valeur est faible.

Ici, nous choisissons de régler la cavité au couplage critique en présence de la résonance magnétique, nous obtenons une intensité de sonde nulle en sortie : $I_S^{Out}(W_{MW} \neq 0) = 0$. En l'absence de la résonance magnétique, les propriétés d'absorption au sein de la cavité sont différentes. On n'est donc plus en régime de couplage critique et l'intensité de sortie n'est plus nulle : $I_S^{Out}(W_{MW} = 0) \neq 0$. De cette manière, le contraste défini par l'Équation (I.18) est égal à 1.

Afin d'alléger les notations, nous prenons $\alpha_0 = \alpha(W_{MW} = 0)$, l'absorption de la cavité en l'absence de résonance magnétique, c'est-à-dire en dehors du couplage critique. On a : $\alpha_0 \neq \epsilon$. Par ailleurs, la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu \approx 7$ MHz est telle que décrite [Paragraphe I.5.3](#). Dans le cadre d'une limitation par le bruit de photons, le rapport S/N s'écrit :

$$\frac{S}{N} = \sqrt{\frac{P_S^{Out}}{hc/\lambda_S}} T, \quad (I.29)$$

où P_S^{Out} est la puissance totale du faisceau sonde en sortie de cavité.

On obtient alors :

$$\eta_{cav} = p_f \cdot \frac{h}{g\mu_B} \cdot \left(\frac{\epsilon + \alpha_0}{\epsilon - \alpha_0} \right) \sqrt{\frac{1}{P_S^{In}} \cdot \frac{\lambda_S}{hc}}. \quad (I.30)$$

Nous avons considéré le couplage critique en présence de la résonance magnétique. Dans cette expression, la valeur de α_0 est prise en l'absence de cette résonance magnétique, soit en dehors du couplage critique. On a donc bien $\alpha_0 \neq \epsilon$.

Nous rappelons que ce calcul est effectué dans l'approximation d'une cavité fortement résonante et d'une intensité de sonde intra-cavité faible. Dans le cas général, il faut résoudre le modèle du centre NV complet, présenté [Annexe C](#), et les équations de propagation des champs de pompe et de sonde. Ces équations sont non linéaires et couplées entre elles. Dans la référence [50], une solution numérique permettant de tracer la sensibilité magnétique en fonction du facteur de qualité de la cavité, pour des configurations expérimentales crédibles, est proposée. Il y est montré qu'une augmentation de deux ordres de grandeurs de la sensibilité magnétique par rapport à l'absorption simple passage est possible. Il y est également montré que cette méthode

permet de se rapprocher davantage de la limitation de la sensibilité par projection quantique⁷ qu'avec la magnétométrie par photoluminescence.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le centre NV du diamant ainsi que ces propriétés fondamentales. Nous avons montré qu'il s'apparente à un excellent capteur état solide (le diamant), fonctionnant à température ambiante : il permet de détecter des champs magnétiques oscillants hyperfréquences, tout autant que de mesurer des champs magnétiques statiques de manière quantitative. Nous avons également proposé une méthode originale de détection des résonances magnétiques permettant, en principe, des contrastes avoisinant l'unité. Dans la suite de ce mémoire, nous nous intéressons principalement à ces deux utilisations.

⁷ Le bruit de projection quantique correspond à la limite ultime du bruit que l'on peut espérer de la part d'un système quantique. Il correspond à la racine carré du nombre total d'interrogations quantiques que l'on peut faire par unité de temps. En l'occurrence, c'est le nombre total de centres NV utilisés, multiplié par la fréquence d'interrogation de ces centres NV, laquelle est limitée par la décohérence de ceux-ci.

Chapitre II

Microscopie de photoluminescence d'une couche de centres NV

Dans le [Chapitre I](#), nous avons montré la possibilité d'utiliser une couche de centres NV pour la cartographie de champs magnétiques et pour l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences. Dans les deux cas, la mesure repose sur la Détection par voie Optique de Résonances Magnétiques (ODMR) induites par un champ hyperfréquence. Dans ce chapitre, nous présentons la microscopie de photoluminescence qui permet de détecter ces résonances magnétiques pour une couche de centres NV, avec une résolution spatiale limitée par diffraction.

Dans un premier temps, nous détaillons la fabrication de l'échantillon de diamant contenant une couche de centres NV ([cf. § II.1](#)). Puis nous présentons le microscope de photoluminescence que nous avons conçu, ainsi que ses performances ([cf. § II.2](#)). Nous discutons ensuite de la méthode de pompage optique des centres NV ([cf. § II.3](#)) ainsi que de l'antenne micro-onde produisant les résonances magnétiques ([cf. § II.4](#)). Enfin, nous présentons la caméra utilisée pour la réalisation d'images de photoluminescence ainsi que les performances obtenues en terme de rapport signal sur bruit ([cf. § II.5](#)).

Contenu

II.1	Ingénierie du diamant.....	37
II.1.1	Synthèse du diamant	37
II.1.2	Implantation d'ions	38
II.1.3	Orientation préférentielle des centres NV	42
II.1.4	Contrôle de l'état de charge des centres NV	46
II.2	Un microscope de photoluminescence	47
II.2.1	Montage	47
II.2.2	Grandissement du système.....	48
II.2.3	Résolution spatiale	49
II.2.4	Efficacité de collection des objectifs.....	51
II.3	Pompage des centres NV	52
II.3.1	Puissance nécessaire	52
II.3.2	Pompage par l'objectif de microscope.....	52
II.3.3	Pompage par la tranche.....	54
II.3.4	Utilisation de diamants guides	56
II.3.5	Rôle du liquide d'immersion	56
II.4	Antenne micro-ondes, sensibilités des centres NV à un champ hyperfréquence..	56
II.4.1	Problématique.....	57
II.4.2	Design des antennes micro-ondes	57
II.4.3	Performances attendues	58
II.4.4	Performances réelles.....	59
II.5	Choix de la caméra.....	59
II.5.1	Intensité au niveau de la caméra	60
II.5.2	Limitation par bruit de photons.....	61
II.5.3	Bruit technique basse fréquence additionnel.....	63
	Conclusion.....	63

II.1 Ingénierie du diamant

II.1.1 Synthèse du diamant

Comme nous l'avons mentionné [Chapitre I](#), nous souhaitons mesurer la photoluminescence des centres NV. À cet effet, il nous faut disposer de cristaux de diamant dont la pureté est élevée, afin que la photoluminescence parasite reste faible devant la photoluminescence des centres NV d'intérêt. L'utilisation de diamants naturels est donc impossible, du fait de l'inclusion trop importante de centres colorés ([cf. Chap. I § I.1](#)).

Dans les années cinquante, la technique de synthèse du diamant, dite HPHT (*High pressure High Temperature*), a été mise au point [42]. Elle permet d'obtenir des échantillons dont la pureté excède celle des diamants naturels mais est encore insuffisante pour nos applications.

Une méthode plus récente, dite CVD (*Chemical Vapor Deposition*), consiste à faire croître un diamant à partir du méthane, par dépôt successif d'atomes de carbone [43]. Cette méthode permet de maîtriser précisément l'inclusion d'impuretés. En particulier, la quantité d'atomes d'azote incorporés peut être contrôlée. Ceci permet d'obtenir des concentrations variables en centres NV.

La compagnie anglaise « *Element 6* » propose à la vente des diamants CVD dont la meilleure qualité disponible ces dernières années est spécifiée avec une concentration en azote inférieure à 1 ppm et possède une photoluminescence naturelle non négligeable. Dans le cadre de l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences, l'épaisseur de la couche dont on reçoit la photoluminescence peut être importante ([cf. § IV.3.2](#)). L'utilisation de tels diamants est donc possible.

En revanche, dans le cadre de la cartographie de champs magnétiques, cette photoluminescence, bien qu'issue principalement des centres NV, peut être gênante. En effet, elle provient du diamant tout entier, et non seulement de sa surface. Ceci rend impossible la discrimination du signal provenant des centres NV proches de la surface (soumis au champ magnétique d'intérêt) du signal parasite de l'ensemble du diamant. Pour cette application, il est impératif d'utiliser du diamant ultrapur⁸, c'est-à-dire exempts de toute photoluminescence parasite. Dans ces diamants, une fine couche de centres NV proche de la surface est créée artificiellement par implantation ionique.

⁸ Dans notre cas, nos échantillons de diamant ultrapurs nous ont été fournis par le LSPM (Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux) de Villetaneuse, dans le cadre de la collaboration pour le projet ADVICE [27].

II.1.2 Implantation d'ions

II.1.2.1 Principe de l'implantation d'ions

Comme nous l'avons précisé [Chapitre I \(§ I.6\)](#), la mesure du champ magnétique repose sur l'imagerie de photoluminescence d'une couche de centres NV à la surface d'un diamant massif. Voici les propriétés recherchées :

- la couche de centres NV doit être fine et proche de la surface, afin d'être sensible aux variations locales de champ magnétique de l'échantillon d'intérêt ;
- la concentration surfacique en centres NV, proportionnelle au signal de photoluminescence utile, doit être la plus importante possible ;
- les centres NV doivent être répartis selon les quatre directions cristallographiques du diamant, pour rendre possible la mesure vectorielle du champ (*cf. Chap. III § III.3*) ;
- la luminescence parasite, c'est-à-dire non créée par les centres NV, doit être négligeable ;
- la cohérence des centres NV (*cf. § I.5.3*) doit rester suffisamment bonne pour que la sensibilité de la mesure ne soit pas détériorée.

Pour nos applications de magnétométrie, la synthèse des centres NV a été effectuée par implantation ionique dans l'équipe de Jan Meijer et Sébastien Pezzagna dans le laboratoire RUBION, à Bochum en Allemagne⁹ [52]. Différents types d'ions contenant au moins un atome d'azote (CN^- , N^+ , N^{2+}) peuvent être utilisés selon le type d'implanteur. Ces ions possèdent une énergie suffisante pour pénétrer dans le diamant. Leur collision avec les atomes de carbone les ralentissent et créent des lacunes cristallographiques. Enfin, ces atomes d'azote se substituent à des atomes de carbone. Dans le cas où une lacune est située à proximité de l'atome d'azote, cette lacune a la possibilité de migrer jusqu'à l'un des quatre sites adjacents, pour former un centre NV selon l'une des quatre directions cristallographiques. De ce fait, les centres NV sont répartis aléatoirement selon ces quatre directions. Pour cette dernière opération, un recuit à 800 °C est nécessaire.

La profondeur de la couche d'atomes d'azote ainsi formée dépend de l'énergie d'implantation des ions [52]. Il en est de même pour le nombre de lacunes cristallographiques créées et, donc, pour l'efficacité de conversion des atomes d'azote implantés en centres NV. Dans les conditions choisies par la suite, ce taux de conversion doit être environ de 1 % [52]. La concentration finale en centres NV dépend également de la dose implantée, mesurée sous la forme d'une concentration surfacique.

⁹ L'équipe de Jan Meijer et Sébastien Pezzagna a depuis quitté l'université de la Rhur pour l'université de Leipzig.

II.1.2.2 Échantillon Adv-Sc-04

Afin d'éviter toute photoluminescence parasite due à des impuretés du diamant, nous sommes partis, en premier lieu, d'un diamant CVD ultrapur fabriqué au LSPM¹⁰ de Villetaneuse. Le diamant a ensuite été poli, afin de garantir la planéité de la surface.

Des ions CN^- ont été implantés avec une énergie de 96 keV, menant en principe à la formation d'une couche de centres NV à environ 70 nm de la surface [53]. Plusieurs concentrations surfaciques ont été implantées selon le modèle présenté Figure II.1.a. L'échantillon a ensuite été recuit sous vide à 800 °C.

Nous avons tout d'abord mesuré l'intensité de sa photoluminescence, en le plaçant dans le microscope confocal décrit Annexe A : la Figure II.1.b présente ce signal en fonction de la dose d'implantation. Cette intensité de luminescence n'augmente pas de manière proportionnelle avec la dose implantée. À partir d'une concentration de $10^{15} \text{ CN}^- \cdot \text{cm}^{-2}$, la surface du diamant est détériorée en surface. Cette dégradation est visible Figure II.1.b. Le maximum de photoluminescence est pratiquement atteint pour une dose de $10^{13} \text{ CN}^- \cdot \text{cm}^{-2}$.

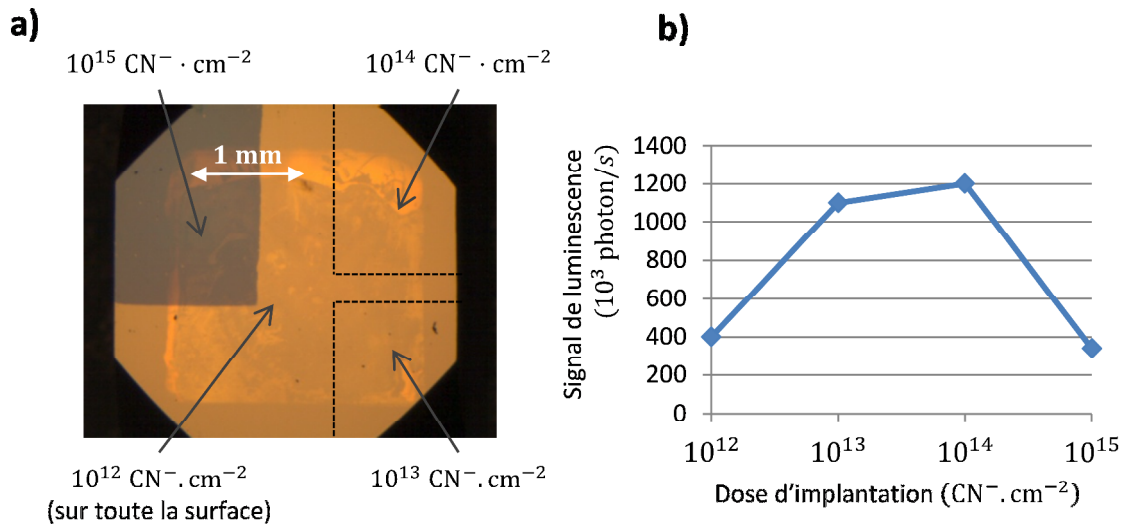


Figure II.1 : Échantillon Adv-sc-04.

a) Modèle d'implantation. b) Intensité de photoluminescence en fonction de la dose d'implantation.

Par ailleurs, nous pouvons déterminer la concentration en centres NV. Le microscope confocal nous permet de mesurer l'intensité de luminescence en fonction de la puissance de pompe. En se plaçant loin de la saturation optique, l'amplitude de photoluminescence de chaque centre NV est proportionnelle à l'intensité de la pompe (cf. Chap. I § I.3). Au foyer objet du microscope confocal décrit Annexe A, le profil d'excitation $I_p(r)$ prend la forme d'une gaussienne :

¹⁰ LSPM : Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux, UPR 3407 (CNRS).

$$I_p(r) = I_p^0 \cdot e^{\frac{-2r^2}{w_p^2}}, \quad (\text{II.1})$$

où r est la distance au centre de la gaussienne et w_p le *waist*. Pour un centre NV unique placé au maximum du spot d'excitation, l'intensité de luminescence S_1 est proportionnelle à I_p^0 :

$$S_1 = a \cdot I_p^0, \quad (\text{II.2})$$

où a est le facteur de proportionnalité.

Si on note n_{NV} la concentration surfacique en centres NV et $I_p(r)$ l'intensité de pompe, le signal total $S_{n_{NV}}$ de photoluminescence de la couche de centres NV transmis par le microscope s'écrit :

$$S_{n_{NV}} = \iint_{\text{Zone éclairée}} n_{NV} \cdot a \cdot I_p^0 \cdot e^{\frac{-2r^2}{w_p^2}} * ds \quad (\text{II.3})$$

$$S_{n_{NV}} = n_{NV} \cdot \frac{\pi w_p^2}{2} \cdot S_1.$$

Expérimentalement, pour la zone implantée à 10^{13} , on mesure¹¹ :

$$\frac{S_{n_{NV}}}{S_1} = 110 \quad (\text{II.4})$$

$$2w_p = 321 \text{ nm}$$

$$n_{NV} = 2,7 \cdot 10^3 \text{ NV} \cdot \mu\text{m}^{-2} = 2,7 \cdot 10^{11} \text{ NV} \cdot \text{cm}^{-2}.$$

Ceci correspond à un taux de conversion d'environ 2,7 %.

Nous

donnons

Tableau II.1 les concentrations surfaciques en centres NV pour les quatre zones implantées.

Dose d'implantation ($\text{CN}^- \cdot \text{cm}^{-2}$)	Intensité de photoluminescence ($10^3 \text{ photon} \cdot \text{s}^{-1}$)	Concentration en centres NV ($\text{NV} \cdot \text{cm}^{-2}$)	Efficacité de conversion
10^{12}	400	$1,0 \cdot 10^{10}$	10 %
10^{13}	1 100	$2,7 \cdot 10^{11}$	2,7 %
10^{14}	1 200	$3,0 \cdot 10^{11}$	0,3 %
10^{15}	340		

Tableau II.1 : Diamant Adv-sc-04.

¹¹ Ces mesures ont été réalisées avec le dispositif de microscopie confocale (*cf. Ann. A*). On mesure, tour à tour, la photoluminescence d'un échantillon contenant des centres NV uniques et celle d'un échantillon contenant des ensembles. La puissance de pompe utilisée est très inférieure à la de puissance de saturation optiques (*cf. Chap. I § I.3.3*) afin que le signal de photoluminescence de chacun des centres NV soit proportionnel à l'intensité qu'il reçoit.

Les valeurs que nous obtenons sont en bon accord avec [52]. Pour les autres diamants de ce manuscrit, les concentrations en centres NV seront déduites des résultats de cette publication.

II.1.2.3 Échantillon Adv-Sc-09

Par la suite, nous avons réalisé un échantillon de diamant aminci, afin de pouvoir valider la méthode de microscopie de photoluminescence au travers du diamant (cf. § II.2). Ceci rend possible l'étude d'échantillons magnétiques opaques.

L'échantillon Adv-sc-09 a donc été découpé au laser dans son épaisseur, pour former un diamant ayant une épaisseur de 250 μm , puis poli sur ses deux faces. Par ailleurs, afin d'étudier plus en détail l'effet de la dose et de l'énergie d'implantation, nous avons implanté ce diamant selon le modèle présenté Figure II.2.a. Nous avons choisi ici d'implanter des ions $^{15}\text{N}^+$ afin de minimiser l'effet de l'interaction hyperfine et de distinguer les centres NV natifs des centres NV implantés (cf. Chap. I § I.5.3).

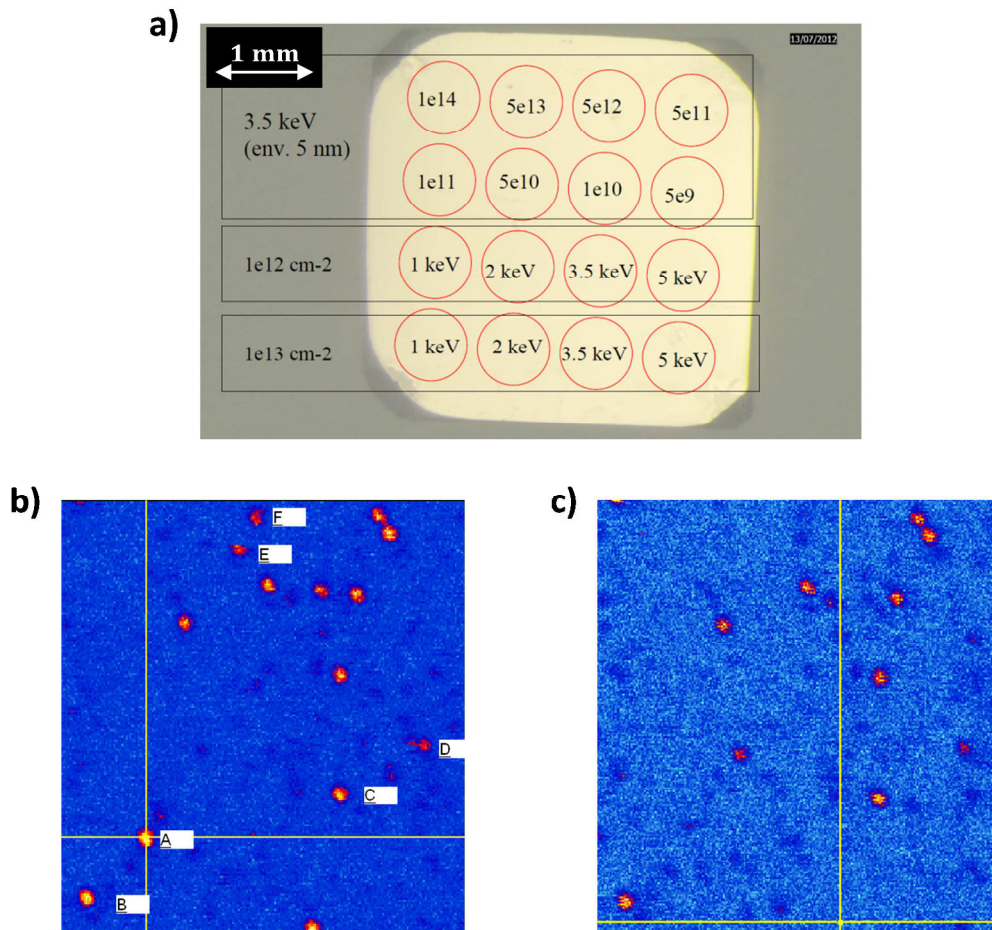


Figure II.2 : Échantillon Adv-sc-09.

a) Modèle d'implantation. b) Image confocale de la zone implantée à $5 \cdot 10^9 \text{ N}^{2+}/\text{cm}^2$ à 3,5 keV, avant l'étude des centres uniques marqués A à F. c) Image confocale de la même zone après étude des centres uniques marqués A à F.

Cependant, cet échantillon possède un comportement étrange qui rend impossible l'approfondissement de cette étude de manière quantitative. En effet, en dépit de la photostabilité des centres NV, généralement considérée comme parfaite, le signal de photoluminescence observé tend à décroître au fur et à mesure de l'étude. Sur les zones les moins fortement implantées, pour lesquelles les centres NV peuvent être isolés à l'échelle individuelle, certains disparaissent à mesure qu'on les observe. Les [Figures II.2 \(b & c\)](#) montrent la correspondance d'une image de microscopie confocale avant et après l'étude des propriétés de spin des centres NV uniques, repérés par les lettres *A* à *F*. En particulier, les spots *A*, *E* et *F* semblent avoir disparus.

II.1.2.4 Échantillon Adv-Sc-19

Enfin, nous avons réalisé un second échantillon mince (environ 250 μm). Celui-ci a été poli sur ces six faces selon les plans cristallographiques (100), afin de permettre le pompage des centres NV par réflexion totale (*cf.* § II.3.3). L'implantation a été effectuée avec des ions $^{15}\text{N}^+$ sur l'ensemble de la surface, avec une dose de $10^{14} \text{ }^{15}\text{N}^+ \cdot \text{cm}^{-2}$ et une énergie de 5 keV, ce qui correspond à une distance de la surface de 8 nm et à une épaisseur de couche de 5 nm. Selon [52], cela correspond à une concentration en centres NV d'environ $10^{12} \text{ NV} \cdot \text{cm}^{-2}$. Dans la suite de ce mémoire, sauf mention contraire, nous utilisons cet échantillon de diamant.

II.1.3 Orientation préférentielle des centres NV

De récents résultats ont montré que l'incorporation d'atomes d'azote au cours de la croissance CVD pouvait mener à l'orientation des centres NV selon une ou deux directions privilégiées parmi les quatre axes cristallographiques du diamant. En particulier, les centres NV peuvent être orientés préférentiellement selon les directions cristallographiques (111) et $(\bar{1}\bar{1}1)$, si l'on incorpore des atomes d'azote au cours d'une croissance CVD dans la direction (110) [54]. La possibilité d'orienter les centres NV selon un axe unique a été démontrée plus récemment, au cours d'une croissance selon (111) [55, 56]. Nous verrons [Chapitre IV](#) qu'une telle orientation peut présenter un intérêt majeur pour l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences. En magnéto-métrie, une amélioration du contraste d'un facteur 4 doit pouvoir être obtenue. Cependant, cela se fera au détriment de l'analyse vectorielle du champ magnétique, laquelle requiert la présence de centres NV selon au moins trois des quatre axes cristallographiques (*cf.* [Chap. III § III.3](#)).

En collaboration avec le LSPM et l'équipe du LPQM de l'ENS Cachan¹², nous avons étudié un diamant dont la croissance CVD a été faite au LSPM selon la direction cristallographique (113). Des atomes d'azote ont été incorporés au cours de la croissance pour fabriquer des centres NV dans le volume du diamant. Nous cherchons à

¹² LPQM : Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire. L'équipe a depuis déménagé au LAC (Laboratoire Aimé Cotton) à Orsay.

vérifier ici que ces centres NV sont effectivement orientés selon une direction privilégiée.

Pour cela, nous comparons des spectres de photoluminescence d'un diamant de type (100), ici Adv-Sc-19, et du diamant (113), référencé AT-1428M. Tous deux sont collés sur une lame de verre tel que présenté [Figure II.3.a](#). Un champ magnétique permanent permet de séparer les résonances magnétiques selon les quatre directions cristallographiques du diamant (*cf.* [Chap. III Fig. III.1](#)). La [Figure II.3.b](#) présente les spectres ODMR des échantillons de diamant d'orientations cristallographiques (100) et (113).

Pour le diamant de type (100), quatre paires de résonances notées (a), (b), (c) et (d) sont présentes. Les résonances (b) et (c) ne sont pas parfaitement résolues, mais l'ajustement de courbes lorentziennes permet d'identifier précisément leur position (*cf.* [Chap. III § III.2.1](#)).

Le spectre ODMR du diamant de type (113) ne présente plus que trois paires de résonances sur les quatre. L'une d'entre elle possède un contraste plus important que les autres. Cela démontre que les centres NV sont effectivement orientés principalement selon une direction privilégiée.

Dans la suite de ce paragraphe, nous attribuons les résonances magnétiques à chacune des directions cristallographiques (a), (b), (c) et (d), définies dans le repère (x, y, z) grâce à l'[Équation \(II.5\)](#), et nous vérifions que la quatrième résonance est bien absente, et non confondue avec une autre. On a :

$$\begin{aligned}\vec{a} &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ -1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} & \vec{b} &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} \\ \vec{c} &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} & \vec{d} &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)}\end{aligned}\tag{II.5}$$

où \vec{i} est le vecteur unitaire dans la direction (i). La [Figure II.3.c](#) présente la maille cristallographique du diamant avec le repère (x, y, z) associé aux faces cristallographiques (100) et le repère (u, v, w) associé à la face de type (113) représenté en rouge. Les directions (a), (b), (c) et (d) définies ci-dessus y sont également représentées. Le spectre ODMR du diamant (100) permet de déterminer le champ magnétique appliqué, dans le repère du laboratoire (*cf.* [Chap. III § III.2 & III.3](#)). La [Figure II.3.a](#) permet de constater que le repère associé au diamant de type (100) est identique au repère (u, v, w). La mesure du champ magnétique avec le diamant (100) donne donc :

$$\vec{B} = \begin{pmatrix} -3,44 \\ 2,79 \\ -2,86 \end{pmatrix}_{(u,v,w)} \text{ mT.}\tag{II.6}$$

La [Figure II.3.d](#) présente la direction du repère (u, v, w) dans lequel nous connaissons le champ magnétique. En revanche, les directions (a), (b), (c) et (d) sont

connues dans le repère (x, y, z) . Il est donc nécessaire de déterminer la matrice de passage entre ces deux bases.

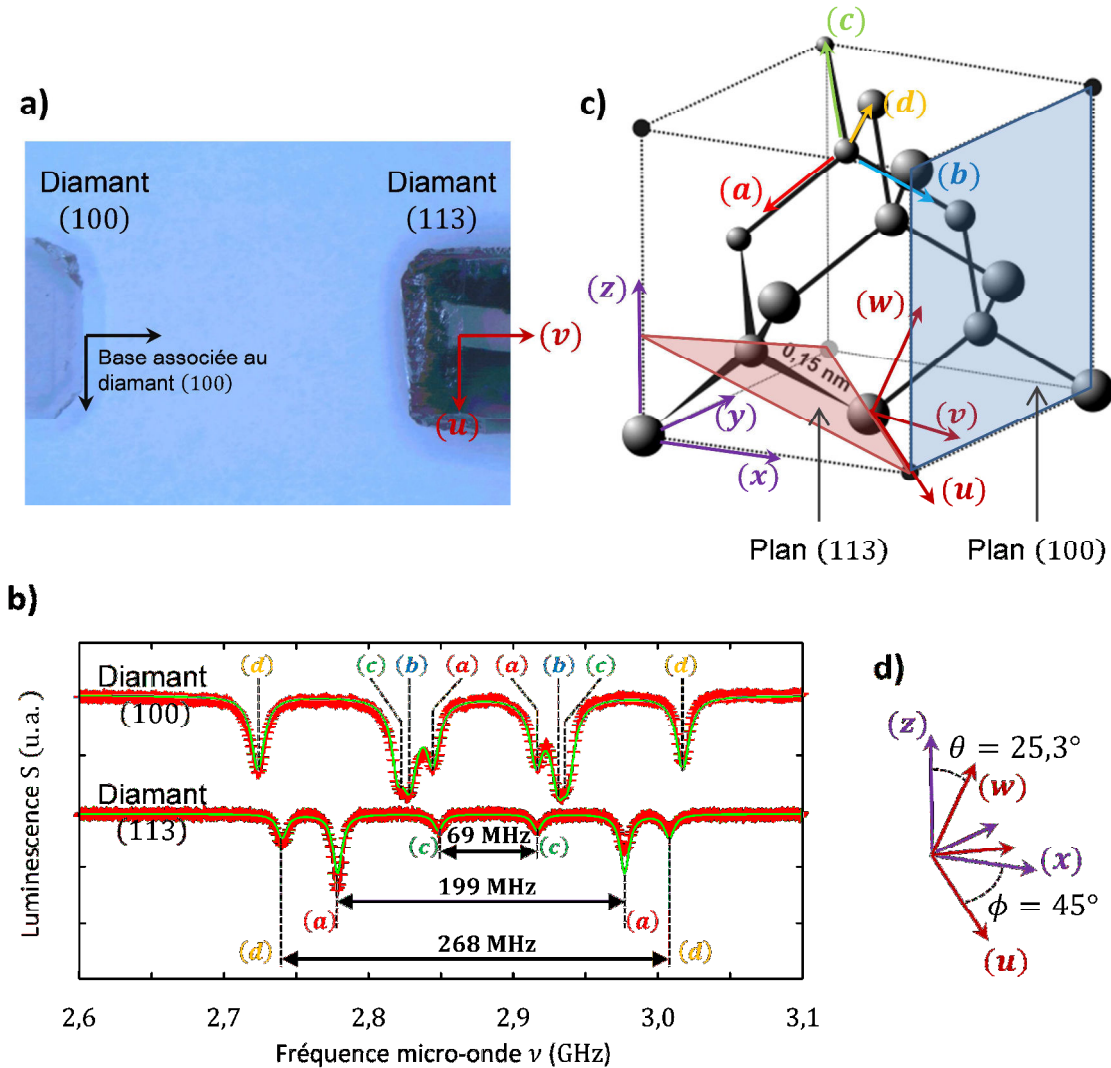


Figure II.3 : Diamant (113).

- a) Positions des échantillons de diamant sur la lame de verre.
- b) Spectres ODMR des échantillons de diamants de type (100) et (113) en présence d'un champ magnétique uniforme et identique dans les deux cas.
- c) Maille cristallographique du diamant ; plans (100) et (113) ; axes (x, y, z) et (u, v, w) .
- d) Orientation relative des axes (x, y, z) et (u, v, w) .

On constate tout d'abord que le vecteur \vec{u} est orienté le long de l'intersection des plans (113) et (100) ; il est tel que $\vec{u} = \vec{x} - \vec{y}$. Par ailleurs, \vec{w} est orienté selon (113) ; il est donc tel que $\vec{w} = 1/\|\vec{w}\| \cdot (1\vec{x} + 1\vec{y} + 3\vec{z})$. Enfin, (u, v, w) est une base orthonormée directe, telle que $\vec{v} = \vec{w} \times \vec{u}$ (produit vectoriel).

Finalement, on obtient :

$$\vec{u} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} \quad \vec{v} = \frac{1}{\sqrt{22}} \begin{pmatrix} 3 \\ 3 \\ 2 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} \quad \vec{w} = \frac{1}{\sqrt{11}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 3 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} \quad (\text{II.7})$$

De cette manière, la matrice de passage de (x, y, z) vers (u, v, w) s'écrit :

$$P_{(x,y,z)}^{(u,v,w)} = \frac{1}{\sqrt{22}} \begin{pmatrix} \sqrt{11} & 3 & \sqrt{2} \\ -\sqrt{11} & 3 & \sqrt{2} \\ 0 & 2 & -3\sqrt{2} \end{pmatrix} \quad (\text{II.8})$$

La valeur du champ magnétique dans (x, y, z) devient :

$$\vec{B}_{(x,y,z)} = P_{(x,y,z)}^{(u,v,w)} \vec{B}_{(u,v,w)}. \quad (\text{II.9})$$

Nous pouvons alors calculer la projection de \vec{B} sur les directions (a) , (b) , (c) et (d) :

$$\begin{aligned} \vec{B}_{(x,y,z)} \cdot \vec{a} &= 3.68 \text{ mT, soit } 206 \text{ MHz} ; & \vec{B}_{(x,y,z)} \cdot \vec{b} &= -0.47 \text{ mT, soit } 26,4 \text{ MHz} ; \\ \vec{B}_{(x,y,z)} \cdot \vec{c} &= 1,40 \text{ mT, soit } 78,6 \text{ MHz} ; & \vec{B}_{(x,y,z)} \cdot \vec{d} &= -4,62 \text{ mT, soit } 258 \text{ MHz.} \end{aligned} \quad (\text{II.10})$$

Par ailleurs, le spectre ODMR du diamant de type (113) nous donne trois valeurs de fréquence : 69, 199 et 268 MHz. Il est alors possible de les attribuer sans ambiguïté aux composantes (c) , (a) et (d) , respectivement. Les différences observées avec les grandeurs calculées dans l'Équation (II.10) proviennent du fait que le champ magnétique généré par un aimant n'est pas parfaitement maintenu lors du passage du diamant (100) au diamant (113) et que ces deux diamants ne sont pas parfaitement alignés.

Afin d'interpréter ce résultat, nous pouvons calculer l'angle entre la direction de croissance et chacune des directions (a) , (b) , (c) et (d) :

$$\begin{aligned} |\vec{w} \cdot \vec{a}| &= \frac{5}{\sqrt{33}} = \cos(29,5^\circ) ; & |\vec{w} \cdot \vec{b}| &= \frac{1}{\sqrt{33}} = \cos(80,0^\circ) ; \\ |\vec{w} \cdot \vec{c}| &= \frac{3}{\sqrt{33}} = \cos(58,5^\circ) ; & |\vec{w} \cdot \vec{d}| &= \frac{3}{\sqrt{33}} = \cos(58,5^\circ). \end{aligned} \quad (\text{II.11})$$

Le contraste associé à la direction (a) est le plus important. Les centres NV semblent donc se disposer préférentiellement selon la direction faisant le plus petit angle avec la direction de croissance. La résonance correspondant à la direction (b) d'un angle plus important est indétectable, tandis que les résonances correspondantes aux directions (c) et (d) intermédiaires sont équivalentes entre elles. Il y a donc effectivement une orientation préférentielle selon la direction $(a) = (113)$.

Dans notre cas, nous ne pouvons pas mesurer quantitativement les proportions des centres NV selon les quatre directions. En effet, comme démontré dans l'Annexe C, le contraste des résonances est largement non linéaire avec le taux de transfert micro-onde W_{MW} , lequel est également dépendant de la polarisation du champ magnétique oscillant par rapport à l'axe cristallographique du centre NV. Ainsi le contraste observé pour chacun des axes (a) , (b) , (c) et (d) n'est pas proportionnel au nombre de centres NV correspondants. Afin de déterminer ces proportions, à la lumière de la publication

[55] concernant un diamant de type (111), notre collaboratrice Margarita Lesik du LAC envisage d'établir des statistiques sur un échantillon de diamant dont la densité surfacique en centres NV est moindre, de sorte que l'on puisse les isoler individuellement avec un microscope confocal.

Nous pouvons néanmoins interpréter ces résultats de manière qualitative à la lumière des publications [55, 56]. Au cours de la croissance CVD, lorsqu'un atome d'azote est incorporé à la place d'un atome de carbone, l'atome de carbone suivant s'implantera facilement s'il peut former plusieurs liaisons avec les atomes de carbone déjà en place. Ainsi, les sites cristallographiques dans les directions (b) , (c) et (d) , faisant un angle faible avec la surface (113) de la partie du diamant déjà constitué, recevront très probablement un atome de carbone, interdisant ainsi la formation d'une lacune dans ces directions. En revanche, pour la direction $(a) \equiv (111)$, l'angle avec la surface est important et le site correspondant est moins attractif pour l'incorporation d'un atome de carbone. Une lacune peut alors se constituer plus facilement dans cette direction et conduire à la formation d'un centre NV.

II.1.4 Contrôle de l'état de charge des centres NV

Comme nous l'avons précisé [Chapitre I \(§ I.2\)](#), seul l'état de charge NV^- possède les propriétés de spin requises. Plusieurs études ont montré la dépendance de l'état de charge du centre NV en fonction de l'état de surface du diamant et de la profondeur d'implantation du centre NV [57]. Dans notre cas, l'état de la surface du diamant est imposée par un traitement acide¹³ [58]. Les terminaisons de surface sont alors de type OH. Ces terminaisons, donneuses d'électrons, favorisent la forme chargée négativement NV^- . Ainsi, étant données les profondeurs d'implantations considérées et cet état de surface, les centres NV obtenus sont effectivement majoritairement dans cet état de charge.

En pratique, nous pouvons vérifier expérimentalement cet état de charge par la présence des résonances magnétiques (*cf.* [Chap. I § I.4](#)). Il peut également être caractérisé par l'acquisition de spectres de photoluminescence. Pour cela, nous plaçons un monochromateur à la place du « détecteur » de notre montage de microscopie confocale présenté [Annexe A](#).

Pour la zone implantée à $10^{13} \text{ CN}^- \cdot \text{cm}^{-2}$ de l'échantillon de diamant Adv-Sc-04, nous obtenons les spectres de photoluminescence présentés [Figure II.4](#), lorsque les centres NV sont pompés à $\lambda_p = 532 \text{ nm}$ ou 514 nm . La comparaison du spectre à 532 nm avec des spectres de référence pour les états de charge NV^- et NV^0 confirme qu'une majorité de centres NV^- contribue au signal de photoluminescence. À contrario, avec un laser de pompe à 514 nm , on observe une quantité non négligeable de centres NV^0 . Ceci s'explique par le décalage des spectres d'absorption des centres NV^0 par

¹³ Le traitement acide consiste en un bain chaud du diamant dans un mélange d'acide nitrique, sulfurique et perchlorique dans les proportions 1:1:1.

rapport au centre NV^- [59]. En effet, à 514 nm, l'efficacité de pompage est meilleure pour les centres NV^0 que pour les centres NV^- .

Des effets de photochromisme, impliquant des transferts de charge entre les centres NV, ont été proposés [60]. Dans le cadre de ce travail, afin de favoriser l'excitation des centres NV^- , nous utilisons un laser de pompe à $\lambda_p = 532$ nm, pour toutes les mesures que nous présentons, hormis pour l'acquisition de ces spectres de photoluminescence.

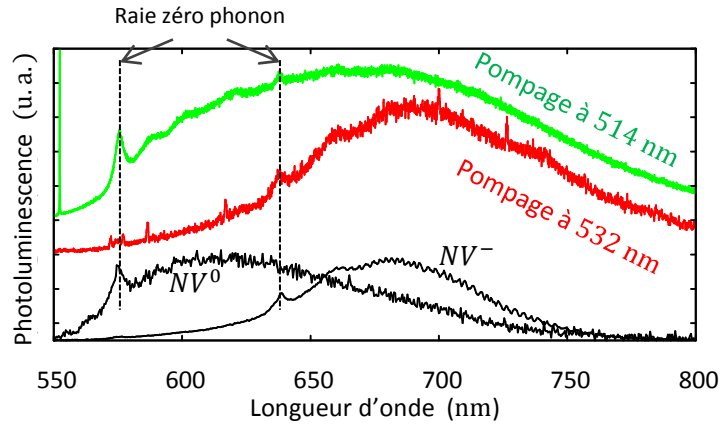


Figure II.4 : Photochromisme de l'échantillon Adv-sc-04.

Spectres de photoluminescence de la zone implantée à $10^{13} \text{ CN}^- \cdot \text{cm}^{-2}$ du diamant Adv-Sc-04 ; excitations optiques à 532 nm (en rouge) et 514 nm (en vert) ; spectres de référence [57] d'un centre NV^0 et d'un centre NV^- (en noir).

II.2 Un microscope de photoluminescence

II.2.1 Montage

Nous détaillons dans le [Paragraphe II.1](#) la création d'une fine couche riche en centres NV. Tel qu'exposé [Chapitre I \(§ I.6\)](#), la cartographie de champs magnétiques et l'analyse de spectre de signaux hyperfréquences repose sur la détection optique des résonances magnétiques de ces centres NV soumis à un champ magnétique. Il faut donc placer cette couche de centres NV au plus près de la source de champ magnétique et réaliser l'image de sa luminescence. Pour ce faire, nous avons donc réalisé un microscope optique, présenté [Figure II.5.a](#). Un objectif de microscope collecte la luminescence des centres NV au travers du diamant et renvoie son image à l'infini. Puis une lentille focalise cette image sur une caméra CCD. Une platine de translation micrométrique trois axes permet d'ajuster la position du diamant par rapport à l'objectif, afin de permettre le positionnement de la zone imagée et d'y faire la mise au point.

Par convention, on ajoutera le symbole « prime » (') aux grandeurs liées au côté image du microscope, c'est-à-dire au niveau de la caméra, tandis que cette marque sera absente pour les grandeurs relatives au côté objet, c'est-à-dire au niveau du diamant.

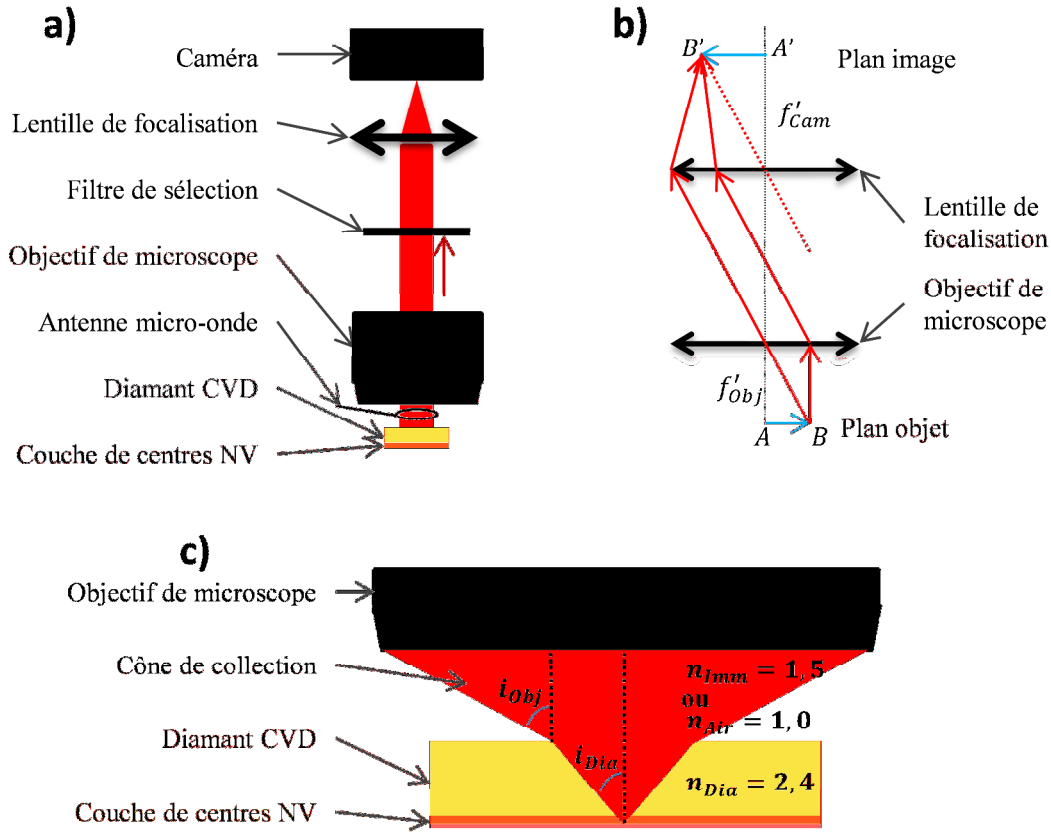


Figure II.5 : Montage de microscopie.

a) Montage de microscopie. b) Schéma optique, formation des images. c) Collection de la luminescence.

II.2.2 Grandissement du système

Le grossissement de l'objectif¹⁴ est défini comme le rapport entre une longueur de tube $L_{Tube} = 180$ mm et la focale f'_{obj} :

¹⁴ Les fabricants d'objectifs de microscope définissent le grossissement commercial comme le grandissement d'un système optique comprenant l'objectif renvoyant l'image à l'infini et d'une lentille de focale L_{Tube} permettant de la reformer à distance finie. Dans notre cas, cette distance vaut : $L_{Tube} = 180$ mm, tandis que d'autres constructeurs choisissent $L_{Tube} = 160$ mm.

Cette définition varie légèrement de la définition classique du grossissement commercial, qui est le rapport entre l'angle d'un objet vu par l'objectif de microscope par rapport à cet objet vu par un œil humain au *ponctum proximum*, c'est-à-dire à une distance $L_{PP} = 250$ mm. La formule du grossissement reste similaire : $G_{obj} = \frac{L_{PP}}{f'_{obj}}$.

$$G_{Obj} = \frac{L_{Tube}}{f'_{Obj}}. \quad (II.12)$$

On dispose de plusieurs objectifs à air avec des grossissements commerciaux G_{Obj} allant de 10 à 100, et d'un objectif à immersion à forte ouverture numérique $ON_{Obj} = 1,35$, ayant un grossissement commercial $G_{Obj} = 60$.

On note f'_{Cam} la focale de la lentille de focalisation sur la caméra et G_{Th} le grossissement théorique total (objectif plus lentille). On présente Figure II.5.b la formation des images au travers de la combinaison optique « objectif plus lentille ». Les lois de l'optique géométrique donnent :

$$G_{Th} = \frac{G_{Obj} \cdot f'_{Cam}}{L_{Tube}}. \quad (II.13)$$

En pratique, on dispose de plusieurs lentilles dont les focales varient de $f'_{Cam} = 50$ mm à 250 mm. Ce qui permet, en adéquation avec l'objectif de microscope, de sélectionner un grossissement adapté. On définit ici une configuration standard associant l'objectif à immersion X60 et une lentille de focale $f'_{Cam} = 75$ mm. Ceci nous donne :

$$G_{Th} = 25. \quad (II.14)$$

Sauf mention contraire, les résultats présentés ici utilisent cette configuration.

Par ailleurs, le grossissement que l'on obtient en pratique peut être mesuré. On prend un repère sur un objet que l'on place au foyer de l'objectif de microscope, puis on mesure, avec l'aide des vis micrométriques de positionnement, le déplacement que l'on doit imposer à ce repère pour traverser le champ de la caméra. On compare alors ce champ d'observation côté objet avec les dimensions du capteur de la caméra (cf. § II.4). On reporte les grandeurs relatives à la microscopie discutées Tableau II.2.

Soit d'_{pix} la taille du pixel de la caméra, et $d_{pix} = d'_{pix}/G_{Ex\backslash Th}$ la taille correspondante côté objet. On a (cf. § II.4) :

$$d'_{pix} = 5,3 \text{ } \mu\text{m}. \quad (II.15)$$

Avec un grossissement $G_{Ex} = 25$, on obtient un échantillonnage sur le diamant de :

$$d_{pix} = 0,21 \text{ } \mu\text{m}. \quad (II.16)$$

Cette dimension est inférieure à la limite de diffraction. La résolution spatiale n'est donc pas limitée par la taille des pixels.

II.2.3 Résolution spatiale

Soit ϕ_0 le diamètre de la tache de diffraction, défini à mi-hauteur. À une longueur d'onde λ_0 donnée, il vaut :

$$\phi_0 \approx 1,22 \times \frac{\lambda_0}{ON_{Obj}}. \quad (II.17)$$

Ainsi, à $\lambda_0 = 532$ nm, avec l'objectif à immersion ayant une ouverture numérique $ON_{Obj} = 1,35$, on obtient :

$$\phi_0 = 480 \text{ nm.} \quad (\text{II.18})$$

Cela nous donne la résolution spatiale transverse de l'objectif de microscope. Pour la résolution longitudinale, on définit d_0 la profondeur de champ :

$$d_0 = \frac{n\lambda_0}{ON_{Obj}}. \quad (\text{II.19})$$

Ce qui nous donne, avec l'objectif à immersion :

$$d_0 = 432 \text{ nm.} \quad (\text{II.20})$$

Les applications numériques pour les autres objectifs de microscope sont indiquées [Tableau II.2](#).

Paramètres des objectifs							
Grossissement commercial	G_{Obj}	10	20	40	80	100	60
Ouverture numérique	ON_{Obj}	0,25	0,50	0,65	0,90	0,95	1,35
Indice d'immersion	n_{Obj}	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,48
Distance de travail totale	Wd_{Obj} (μm)					170	320
Tache de diffraction à $\lambda_0 = 532$ nm							
Diamètre	ϕ_0 (nm)	2 596	1 298	998	721	683	480
Profondeur de champ	d_0 (nm)	8 512	2 128	1 259	657	589	432
Grossissement total avec $f'_{Cam} = 75$ mm							
Taille du pixel côté objet	d_{pix} (μm)	1,13	0,65	0,31	0,17	0,13	0,21
Grandissement réel	G_{Ex}	4,7	8,2	17	31	40	25
Grandissement théorique	G_{Th}	4,2	8,3	17	33	42	25
Taux de collection de la luminescence							
Demi-angle de collection de l'objectif	i_{Obj} (deg)	14	30	41	64	72	65
Demi-angle de collection dans le diamant	i_{Dia} (deg)	6,0	12	16	22	23	34
Taux de collection total	$T \cdot \tau_{Obj}$ (%)	0,24	0,96	1,6	3,2	3,6	8,7

Tableau II.2 : Grandeurs relatives aux objectifs de microscope.

Ces grandeurs ont été mesurées à l'aide d'un montage de microscopie confocal (*cf.* [Ann. A](#)) et étaient en parfait accord avec les grandeurs théoriques. Cependant, sur le montage de microscopie plein champ décrit ici, il est possible que des aberrations chromatiques détériorent notre résolution. Par exemple, l'image est obtenue

au travers d'un diamant d'épaisseur $e_{Dia} = 250 \mu\text{m}$, d'indice $n_{Dia} = 2,4$ introduisant une aberration sphérique. Pour le moment, nous n'avons pas étudié plus en détail les aberrations chromatiques du système. Cependant, nous constatons expérimentalement sur les images que la résolution du système est proche de la résolution théorique.

II.2.4 Efficacité de collection des objectifs

On présente [Figure I.1.c](#) le principe du calcul du taux de collection de l'objectif de microscope.

On note i_{obj} le demi-angle d'ouverture de l'objectif de microscope, tel que :

$$ON_{Obj} = n_{obj} \cdot \sin i_{obj}. \quad (\text{II.21})$$

Le centre NV émet de manière isotrope dans 4π sr. L'objectif de microscope ne collecte que la lumière présente dans l'angle solide défini par le cône de demi-angle au sommet i_{obj} . Dans le diamant, ce cône de collection a un demi-angle au sommet i_{Dia} vérifiant :

$$n_{Dia} \cdot \sin i_{Dia} = n_{obj} \cdot \sin i_{obj} = ON_{Obj}. \quad (\text{II.22})$$

Soit Ω_{Dia} l'angle solide de collection dans le diamant. On a :

$$\Omega_{Dia} = 2\pi \cdot (1 - \cos i_{Dia}). \quad (\text{II.23})$$

On note τ_{obj} le taux de lumière collectée dans le cône :

$$\begin{aligned} \tau_{obj} &= \frac{\Omega_{Dia}}{4\pi} \\ \tau_{obj} &= \frac{1}{2} \cdot (1 - \cos i_{Dia}). \end{aligned} \quad (\text{II.24})$$

On obtient :

$$\tau_{obj} = \begin{cases} 4,1 \% \text{ avec l'objectif à air X100} \\ 8,7 \% \text{ avec l'objectif à immersion.} \end{cases} \quad (\text{II.25})$$

Il nous faut maintenant estimer les pertes à l'interface diamant/air, ou diamant/liquide d'immersion. On note $R_{a/b}$ et $T_{a/b}$ les coefficients de réflexions et de transmission en intensité entre une interface « a » et une interface « b ». On a :

$$\begin{aligned} R_{\text{Diamant/air}} &= \left(\frac{n_{Dia} - n_{Air}}{n_{Dia} + n_{Air}} \right)^2 &= 17 \% \\ R_{\text{Diamant/liquide d'immersion}} &= \left(\frac{n_{Dia} - n_{Obj}}{n_{Dia} + n_{Obj}} \right)^2 &= 5 \% \\ T_{\text{Diamant/air}} &= 1 - R_{\text{Diamant/air}} &= 83 \% \\ T_{\text{Diamant/liquide d'immersion}} &= 1 - R_{\text{Diamant/liquide d'immersion}} &= 95 \%. \end{aligned} \quad (\text{II.26})$$

Finalement, on obtient :

$$\tau_{obj} = \begin{cases} 3,4 \% \text{ avec l'objectif à air X100} \\ 8,3 \% \text{ avec l'objectif à immersion.} \end{cases} \quad (\text{II.27})$$

Ces valeurs numériques sont reportées
Tableau II.2.

De cette manière, l'objectif à immersion permet de collecter plus du double de signal de photoluminescence de l'objectif à air. Il combine une augmentation de l'angle d'incidence, d'une part, et une diminution du coefficient de réflexion à la surface du diamant, d'autre part.

II.3 Pompage des centres NV

II.3.1 Puissance nécessaire

Pour exploiter les propriétés magnétiques des centres NV, il nous faut acheminer un faisceau de pompe au niveau des centres NV (cf. Chap. I § I.3). On utilise généralement des lasers à $\lambda_p = 532$ nm. L'intensité de saturation du centre NV vaut (cf. Chap. I § I.3.3) :

$$\begin{aligned} I_{Sat} &\approx 14 \text{ mW} \cdot \mu\text{m}^{-2} \\ I_{Sat} &\approx 14 \text{ GW} \cdot \text{m}^{-2}. \end{aligned} \quad (\text{II.28})$$

Si l'on souhaite atteindre la saturation de centres NV sur un spot d'environ $100 \mu\text{m}$ de côté, soit $10^4 \mu\text{m}^2$, il faut une puissance totale de l'ordre de :

$$P_{tot} = 14 \text{ W}. \quad (\text{II.29})$$

Ceci justifie l'emploi d'un laser de pompe émettant des puissances assez élevées. Pour cela, nous disposons d'un laser « verdi » à la longueur d'onde $\lambda_p = 532$ nm, dont la puissance de sortie monte jusqu'à 5 W. Ce laser présente en outre l'avantage d'être parfaitement monomode, ce qui garantit une stabilité temporelle du pompage des centres NV.

Dans nos mesures, il demeure un bruit d'intensité technique non lié au laser (cf. § II.4), que l'on peut réduire en faisant des moyennes sur des temps longs. En cela, la qualité de notre laser est probablement surdimensionnée. Ceci permet d'envisager des solutions beaucoup plus compactes.

II.3.2 Pompage par l'objectif de microscope

Nous avons tout d'abord implémenté une voie de pompage au travers de l'objectif de microscope [24, 25] (cf. Fig. II.6.a). Une lame dichroïque permet de séparer le faisceau de pompe de la luminescence utile. Une lentille focalise le faisceau de pompe sur le plan principal image de l'objectif de microscope afin d'obtenir un faisceau collimaté en sortie du côté objet de l'objectif du microscope, c'est-à-dire du côté du diamant que l'on cherche à pomper.

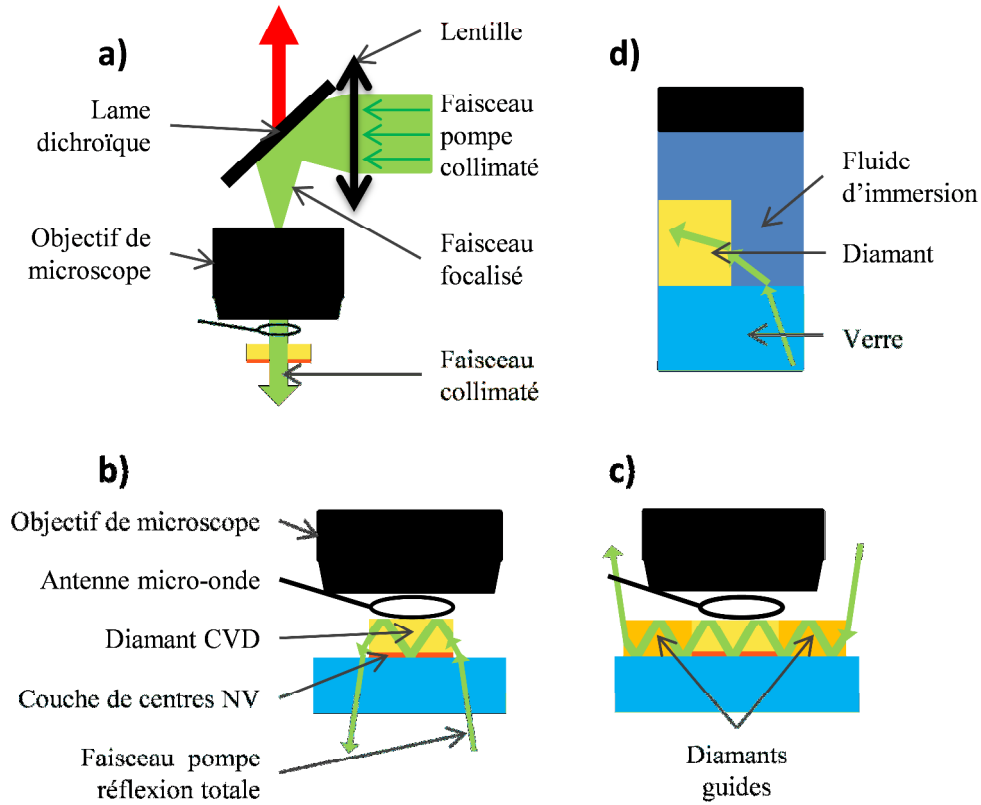


Figure II.6 : Configurations de pompage des centres NV.

a) Pompage au travers de l'objectif de microscope. **b)** Pompage par la tranche du diamant. **c)** Utilisation de diamants guides. **d)** Rôle du liquide d'indice.

Soit f'_1 la focale de cette lentille et $2w_1$ le diamètre du faisceau incident. Dès sa sortie, le laser passe par un système afocal de deux lentilles permettant d'étendre le diamètre du faisceau incident. On obtient :

$$w_1 \approx 5 \text{ mm.} \quad (\text{II.30})$$

Le système optique de l'objectif de microscope et de la lentille forme un système afocal divisant le diamètre du faisceau incident par le rapport de focales.

Si on note $2w_2$ le diamètre du spot d'éclairage, on a :

$$w_2 = w_1 \cdot \frac{f'_{Obj}}{f'_1} \quad (\text{II.31})$$

$$w_2 = w_1 \cdot \frac{L_{Tube}}{G_{Obj}} \cdot \frac{1}{f'_1}$$

Avec l'objectif à immersion X60, si l'on souhaite un diamètre $2w_2 = 100 \mu\text{m}$, il nous faut une lentille de focale :

$$f'_1 = 300 \text{ mm.} \quad (\text{II.32})$$

Cette méthode présente l'inconvénient majeur de propager une forte puissance au travers de l'objectif de microscope, d'autant plus qu'une lentille focalise cette puissance au voisinage des dioptries des optiques, ce qui risque de les endommager. Le spot d'éclairage de centres NV au travers de l'objectif de microscope X60 à immersion est montré [Figure II.7.a](#).

II.3.3 Pompage par la tranche

Nous avons alors imaginé une seconde voie d'acheminement du faisceau de pompe, que l'on présente [Figure II.6.c](#), mettant à profit le fort indice du diamant¹⁵ : $n_{Dia} = 2,4$ [33]. Le faisceau de pompe pénètre dans le diamant par ses faces latérales¹⁶, puis forme des zigzags dans le diamant, grâce au phénomène de réflexion totale, jusqu'à la zone qui se trouve dans le champ de l'objectif de microscope. Le positionnement du faisceau dans cette zone est assuré par des miroirs mobiles placés sur des platines de translation micrométriques.

En pratique, dans cette configuration de pompage, nous utilisons des puissances de pompe de l'ordre de 150 mW, qui mène à des temps de pause de l'ordre de la milliseconde.

Le faisceau incident étant parfaitement dans le mode TEM00, nous utilisons les méthodes de l'optique gaussienne. Une lentille permet de focaliser le faisceau pour obtenir un rayon compatible avec la zone que l'on souhaite éclairer. Soit :

- f'_2 la focale de cette lentille ;
- w_0 le rayon minimum (*waist* en anglais) ;
- z_0 la longueur de Rayleigh ;
- θ_0 la divergence du faisceau.

On a alors :

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda_p} \quad \text{et} \quad \theta_0 = \frac{\lambda}{\pi w_0}. \quad (\text{II.33})$$

Nous devons nous assurer que la faible épaisseur du diamant n'intercepte pas les bords du faisceau. Il faut donc que le diamètre du faisceau reste plus petit que l'épaisseur du diamant sur toute sa longueur : environ 4 mm. Si on admet que l'on souhaite un faisceau gaussien de *waist*¹⁷ :

$$w_0 = 50 \mu\text{m}, \quad (\text{II.34})$$

on a alors :

$$z_0 \approx 1,5 \text{ m} \quad \text{et} \quad \theta_0 \approx 3 \text{ mrad}. \quad (\text{II.35})$$

Ce choix de *waist* offre un bon compromis entre la largeur du champ éclairé et l'intensité de pompage des centres NV.

¹⁵ Cette méthode a été développée en parallèle par l'équipe de Lukin [26].

¹⁶ Les faces latérales du diamant ont été polies pour ne pas dégrader la qualité du faisceau (*cf.* § II.1.2.4).

¹⁷ Le *waist* d'un faisceau gaussien est donné par le rayon à $1/e^2$ de son profil en intensité.

Si on note $w(z)$ le rayon du faisceau à une distance z du rayon minimal, on a :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}. \quad (\text{II.36})$$

Sur la demi-longueur du diamant, pour $z < 2$ mm, le diamètre du faisceau reste inférieur à $2 \cdot w(2) = 170 \mu\text{m}$. Il n'est donc pas intercepté par le diamant.

Afin d'obtenir les paramètres décrits ci-dessus, il nous faudrait utiliser une lentille de focale $f'_2 = \frac{w_1}{\theta_0} = 1,7$ m, ce qui n'est pas compatible avec l'encombrement de l'expérience.

En pratique, on utilise des lentilles dont les focales f'_2 sont comprises entre 150 et 300 mm. On obtient une divergence θ_0 comprise entre 16 et 33 mrad, et un rayon minimal w_0 compris entre 5 et 10 μm . La divergence restant très faible, le diamètre du faisceau reste inférieur à l'épaisseur du diamant sur toute sa longueur.

Si l'on souhaite obtenir un spot plus large pour étendre la surface active, il suffit d'éloigner le point focal en translatant la lentille le long de son axe optique. La [Figure II.7 \(b & c\)](#) montre des spots de pompage des centres NV par les faces latérales. La zone claire correspond à l'intersection du faisceau de pompe décrit ci-dessus avec la surface implantée en centres NV, c'est-à-dire au niveau de la réflexion totale.

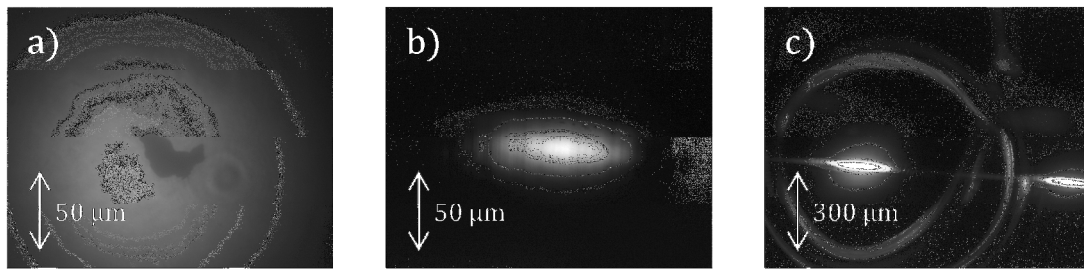


Figure II.7 : Faisceaux de pompage.

a) Pompage au travers de l'objectif à immersion X60. **b)** Pompage par la tranche du diamant, objectif à immersion X60. **c)** Pompage par la tranche du diamant, objectif à air X10. L'image est largement surexposée de sorte à voir apparaître l'antenne micro-onde décrite [Chapitre II \(§ II.4\)](#).

On constate que du fait de l'angle d'incidence, le faisceau est allongé dans le sens de la propagation. À plus faible grossissement (*cf.* [Fig. II.7.b](#)), plusieurs spots correspondant aux différents « zigzags » peuvent être observés. Un second faisceau parallèle au-dessus du premier, légèrement décalé sur la gauche et contenant deux spots plus larges et d'intensités plus faibles, peut également être distingué. Il correspond à la réflexion (non totale) du faisceau sur la face de sortie du diamant.

II.3.4 Utilisation de diamants guides

Afin que le faisceau de pompe ne traverse pas le diamant de part en part sans être réfléchi sur la face implantée, il ne peut pas avoir une incidence trop rasante. Le fort indice du diamant joue de manière défavorable et réduit encore cette l'incidence. Par ailleurs, l'objectif de microscope a un diamètre environ deux fois plus large que le côté du diamant. Pour des questions d'encombrement, il n'est pas possible d'attaquer directement le diamant par ce côté.

Dans le cas où l'échantillon magnétique d'intérêt est sur un substrat transparent, et dans certaines conditions d'encombrement, le faisceau pompe peut arriver du côté de ce substrat, comme présenté [Figure II.6.b](#).

Une autre solution, présentée [Figure II.6.c](#), utilise des diamants « guides ». De cette manière, le demi-espace délimité par la face implantée du diamant est entièrement libéré pour l'échantillon magnétique d'intérêt. Si le contact entre le diamant guide et le diamant implanté est assuré, le faisceau n'est pas dévié par l'interface. Cela revient à considérer un diamant plus grand, qui permet de déporter le point d'entrée du faisceau.

II.3.5 Rôle du liquide d'immersion

Lorsque l'on utilise un objectif à immersion, on remplace, au voisinage du diamant, l'air d'indice $n_{air} = 1,00$ par un fluide d'immersion d'indice $n_{imm} = 1,48$. On présente le rôle de ce liquide d'immersion [Figure II.6.d](#).

Les différences d'indice entre le fluide d'immersion et le verre du support du diamant, ou le diamant lui-même, sont plus faibles. Le faisceau de pompe est alors moins dévié par les réfractions. Il en résulte qu'à l'intérieur du diamant, le faisceau est plus proche de la verticale et fait davantage de zigzags avant de ressortir. Cela offre une plus grande liberté de réglage. Il peut donc être utile d'ajouter une petite goutte de liquide d'immersion sur le bord du diamant, même lorsque l'on utilise un objectif à air. De plus, cela permet de maintenir le réglage du faisceau dans le diamant lorsque l'on passe d'un objectif à air à un objectif à immersion.

II.4 Antenne micro-ondes, sensibilités des centres NV à un champ hyperfréquence

Dans ce paragraphe, nous présentons l'antenne micro-onde qui permet de convertir un signal électrique hyperfréquence de puissance P_{MW} propagé dans un câble coaxial en un champ magnétique d'amplitude B_{MW} , oscillant à la même fréquence, permettant de susciter les résonances magnétiques des centres NV.

II.4.1 Problématique

Dans le cadre de la cartographie de champ magnétique développée [Chapitre III](#), un générateur hyperfréquence fournit un signal dont la puissance maximale de 25 dBm peut être largement suffisante pour saturer la transition magnétique des centres NV (*cf.* [Chap. III § III.4.4.2](#)). En revanche, dans le cadre d'analyse de spectres de signaux hyperfréquences, le signal à analyser peut être beaucoup plus faible. Par ailleurs, selon l'application visée, ce signal peut se présenter sous différentes formes, dont la plus probable est celle d'un signal électrique se propageant dans un câble coaxial d'impédance caractéristique Ω . Enfin, les centres NV sont sensibles à l'intensité du champ magnétique oscillant à la fréquence micro-onde considérée. Afin d'optimiser la détectivité des centres NV, il faut convertir au mieux le signal électrique, de puissance P_{MW} , en un champ magnétique oscillant d'amplitude B_{MW} .

II.4.2 Design des antennes micro-ondes

En règle générale, il faut réaliser une adaptation d'impédance entre le câble coaxial de transfert et l'antenne en elle-même. Cela permet de minimiser les réflexions à l'entrée de l'antenne, de sorte que toute la puissance générée par le générateur soit rayonnée par celle-ci. Dans notre cas, néanmoins, nous souhaitons d'avantage maximiser l'amplitude du champ dans une petite zone de l'espace, plutôt que la puissance totale rayonnée. Par ailleurs, les résonances magnétiques que l'on considère sont proches de $\nu_{MW} = 3$ GHz, soit à une longueur d'onde dans le vide de l'ordre de $\lambda_{MW} \approx 10$ cm. Ainsi, nous choisissons une antenne qui « entoure » les centres NV et dont la taille caractéristique est de l'ordre du millimètre, compatible avec les dimensions du diamant. Cette antenne génère un champ magnétique en son centre, proportionnel au courant dans la boucle, et inversement proportionnel à la surface de celle-ci¹⁸. De ce fait, maximiser l'amplitude du champ au centre de l'antenne revient à maximiser l'intensité du courant électrique qui parcourt le parcours.

Nous avons donc choisi une configuration qui court-circuite l'extrémité du câble coaxial, de sorte que l'impédance de sortie du câble coaxial soit aussi faible que possible. Dans ce cas d'une impédance nulle, on obtiendrait une onde réfléchie qui forme, avec l'onde incidente, une onde stationnaire dans le câble coaxial. L'extrémité en court-circuit formera un nœud de tension, associé à un ventre d'intensité. Une impédance de 50 ohm pourrait également convenir, mais l'absence d'onde réfléchie aurait diminué l'intensité électrique d'un facteur 2. En revanche, un circuit ouvert aurait signifié un nœud d'intensité, et l'absence de champ rayonné à l'intérieur de l'antenne.

Nous avons fabriqué ces deux types d'antennes :

- la première, notée A est présentée [Figure II.8.a](#). Une couche d'or de 200 nm d'épaisseur est lithographiée sur une plaque de verre. Un connecteur coaxial de

¹⁸ La longueur d'onde du champ variable étant grande devant les dimensions de l'antenne, nous pouvons utiliser les lois de la magnétostatique.

type SMA est soudé sur les zones larges prévues à cet effet (à droite de l'image). Le diamant est alors collé ou simplement posé sur la lame de verre en regard de l'antenne. C'est cette antenne qui a été utilisée dans le cadre de la cartographie de magnétique présentée [Chapitre III](#) ; elle est visible [Figure III.1.b](#) ;

- une seconde antenne, notée B, est présentée [Figure II.8.b](#). Elle a notamment été utilisée dans le cadre de l'analyse de spectre détaillé [Chapitre IV](#) et est visible [Figure IV.4.b](#). Cette antenne est constituée d'un fil de cuivre de diamètre 100 μm , entortillé sur lui-même pour former une ligne de propagation torsadée. Une boucle en court-circuit ferme une extrémité de l'antenne, tandis que l'autre est soudée sur l'âme d'un câble coaxial dénudée pour l'un des brins, et sur son blindage pour le second. Cette antenne est généralement placée entre le diamant et l'objectif de microscope. Avec l'objectif à immersion et avec les objectifs à air à faible grossissement (X10 et X20), la distance disponible est toujours suffisante (parfois de justesse), quelle que soit la profondeur où l'on effectue la mise au point dans le diamant.

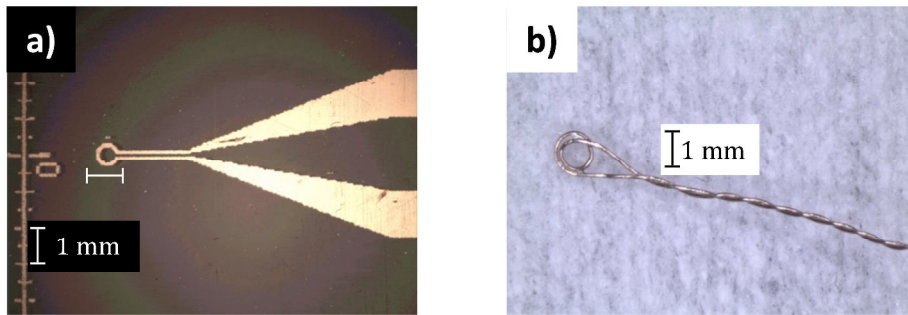


Figure II.8 : Antennes micro-onde.

- a) Antenne lithographiée sur une lame de verre. Le diamant est collé ou posé sur l'antenne.
b) Antenne réalisée à partir d'un fil de cuivre de 100 μm de diamètre. Elle est positionnée entre le diamant et l'objectif de microscope.

II.4.3 Performances attendues

Ici, nous considérons que le plan des centres NV et le plan de l'antenne sont confondus. Nous considérons également que l'impédance caractéristique de l'antenne est nulle et parfaitement localisée au niveau de la boucle. Ces approximations permettent d'estimer l'amplitude du champ magnétique rayonné à l'intérieur de cette boucle, en utilisant les lois de la magnétostatique.

Soit $\phi = 1 \text{ mm}$ le diamètre de l'antenne, et I_{MW} l'amplitude du courant électrique. Le champ intérieur possède une amplitude majorée par :

$$B_{MW} \leq \frac{\mu_0 I_{MW}}{\phi}. \quad (\text{II.37})$$

Si le générateur fournit une puissance incidente P_{MW} , soit un courant incident $I_{MW} = \sqrt{P_{MW}/\Omega}$, le courant dans l'antenne vaut :

$$I_{MW} = 2\sqrt{P_i/\Omega}, \quad (\text{II.38})$$

doublé par la présence de l'onde réfléchi de même amplitude. En pratique, notre générateur fournit au maximum 25 dBm. En prenant $\Omega = 50 \text{ ohm}$, l'impédance caractéristique du générateur de signaux hyperfréquence, nous avons :

$$\max(P_{MW}) = 10^{2,5} = 316 \text{ mW} \quad \text{et} \quad \max(I_{MW}) = 2 \times 80 \text{ mA}. \quad (\text{II.39})$$

On obtient donc une majoration du champ rayonné par l'antenne :

$$B_{MW} \leq 2 \cdot 10^{-4} \text{ T}. \quad (\text{II.40})$$

II.4.4 Performances réelles

En réalité, des mesures préliminaires de réflectivité de l'antenne en fonction de la fréquence micro-onde incidente P_{MW} montrent que la propagation dans la partie torsadée de l'antenne joue un rôle déterminant. Seule une petite fraction du signal parvient sous forme de courant dans la boucle. À ce jour, nous n'avons pas pu quantifier l'intensité de ce courant ni l'amplitude du champ magnétique ainsi rayonné. Dans le cadre de l'analyse de spectres présentée [Chapitre IV](#), nous envisageons une étude plus approfondie du fonctionnement de cette antenne afin d'en améliorer le fonctionnement (*cf. Chap. IV § IV.6.3*). Cette étude pourrait reposer sur un modèle prenant en compte les effets d'émissions de champ et les effets de propagation dans la partie torsadée.

II.5 Choix de la caméra

Comme indiqué [paragraphe II.1](#), nous disposons de diamants ayant une concentration surfacique en centres NV relativement élevée. Nous montrons ici qu'une caméra d'acquisition simple (de faible coût) permet d'acquérir la luminescence des centres NV. Il s'agit de la caméra industrielle "UI-5240CP", de type CMOS, et de la marque uEye. Nous avons sélectionné la version monochrome, sans le filtre proposé par le constructeur qui coupe les proches infrarouges, afin de profiter au mieux de la luminescence des centres NV (*cf. § II.1.4 Fig. II.4*). Certaines caractéristiques notables données par le constructeur sont reportées [Tableau II.3](#).

Caractéristiques constructeur		
Largeur du capteur		1 280 pixels
Hauteur du capteur		1 024 pixels
Taille d'un pixel	e_{pix}	5,3 μm
Dynamique réelle du capteur		10 bit
Encodage des valeurs		12 bit
Réponse du capteur	LSB_{10}	48 bit. $\text{nJ}^{-1} \cdot \text{cm}^2$
Cadence maximale plein champ	f_{img}	50 Hz
Grandeurs mesurées		
Temps d'exposition usuel	T	1 ms
Rapport signal sur bruit		≈ 100

Tableau II.3 : Caractéristiques de la caméra d'acquisition.

II.5.1 Intensité au niveau de la caméra

Le signal mesuré en un pixel, noté S , est codé sur 12 bits, c'est-à-dire de 0 à 4 095. Cependant, la dynamique réelle n'est que de 10 bits, ce qui correspond à 1 024 nuances de gris. En réalité, les deux bits de poids faibles sont constants. Dans la suite de ce mémoire, S représente le signal reçu par un pixel de la caméra, divisé par quatre pour ne considérer que la dynamique réelle.

Soit T le temps d'exposition de la caméra, c'est-à-dire la durée pour laquelle chaque pixel peut recevoir de la lumière.

Intéressons-nous à la réponse du capteur : $LSB_{10} = 48 \text{ nJ}^{-1} \cdot \text{cm}^2$. Le LSB, « *Least Significant Bit* », signifie que le pixel voit sa valeur augmenter de 48 s'il reçoit une énergie par unité de surface de $1 \text{ nJ} \cdot \text{cm}^{-2}$. Nous calculons ci-après le temps nécessaire au capteur pour arriver à saturation, le temps de pause optimal étant immédiatement inférieur à ce temps.

On considère le diamant Adv-Sc-19 présenté [Paragraphe II.1.2.4](#). La concentration surfacique en centres NV est proche de $n_{NV} = 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. L'[annexe A](#) démontre la possibilité de collecter environ $S_1 = 10^4 \text{ photon.s}^{-1}$ pour un centre NV unique, à une longueur d'onde proche de $\lambda_{NV} = 700 \text{ nm}$, soit à une énergie $\frac{hc}{\lambda_{NV}} \approx 3 \cdot 10^{-19} \text{ J}$. Ainsi, il est possible de collecter une intensité I_{NV} telle que :

$$I_{NV} = S_1 \cdot n_{NV} \cdot \frac{hc}{\lambda_{NV}} \quad (\text{II.41})$$

$$I_{NV} = 3 \cdot 10^{-3} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2},$$

par unité de surface sur le diamant. Enfin, en tenant compte du facteur de grandissement du microscope G_{Ex} entre la couche de centres NV et le plan de la caméra, ayant une valeur typique tel que $G_{Ex} = 25$ ([cf. § II.2](#)), le capteur recevra une intensité

$\frac{I_{NV}}{G_{Ex}^2} = 4,8 \cdot 10^{-6} \text{ W.cm}^{-2}$. De cette manière, le capteur arrivera à saturation pour T tel que :

$$T = \frac{1024}{LSB_{10} \times \frac{I_{NV}}{G_{Ex}^2}} \quad (II.42)$$

$$T \approx 4 \text{ ms.}$$

De cette manière, nous confirmons que cette caméra possède une sensibilité satisfaisante pour des temps de pause relativement courts. Ainsi, il est effectivement plus utile de disposer d'une caméra dont les temps d'exposition puissent être courts, afin de profiter pleinement de la puissance lumineuse disponible, plutôt que d'une caméra scientifique faible bruit, généralement plus lente. La vitesse d'acquisition de cette dernière deviendra la principale limitation si l'on parvient à utiliser des échantillons dont les concentrations en centres NV sont plus importantes.

II.5.2 Limitation par bruit de photons

On mesure tout d'abord le bruit de lecture de la caméra. On a pris une série d'images avec un cache sur la caméra, afin qu'elle ne reçoive aucune lumière, et avec un temps d'exposition aussi petit que possible : $T < 10 \mu\text{s}$. La valeur retournée par les pixels n'est pas tout à fait nulle : c'est le bruit de lecture. Ce bruit possède une valeur moyenne proche de 5 et un écart type proche de 2,5. Cela reste très faible devant la dynamique de la caméra et peut être négligé, dans la mesure où l'on dispose de suffisamment de lumière pour les acquisitions.

Lorsque le temps d'exposition augmente, même dans l'obscurité totale, un bruit proportionnel au temps d'exposition s'ajoute à l'*offset* : c'est le courant d'obscurité. On trace la courbe $S = f(T)$ Figure II.9.a. Une régression linéaire permet de montrer que le courant d'obscurité est inférieur à 1 (sans unité, il s'agit du signal renvoyé par la caméra, compris entre 0 et 1024) pour un temps d'exposition de 1 ms. En conclusion, pour les temps d'exposition utilisés, de l'ordre de la milliseconde (cf. § II.5.1), on peut considérer que le courant d'obscurité reste négligeable devant l'*offset*.

On a également vérifié la réponse de la caméra. On l'éclaire avec une lampe blanche, alimentée sur piles afin d'avoir une grande stabilité temporelle. On trace alors le signal reçu sur un pixel en fonction du temps d'exposition (cf. Fig. II.9.b). On observe que l'on peut considérer la réponse comme linéaire tant qu'elle n'arrive pas à saturation.

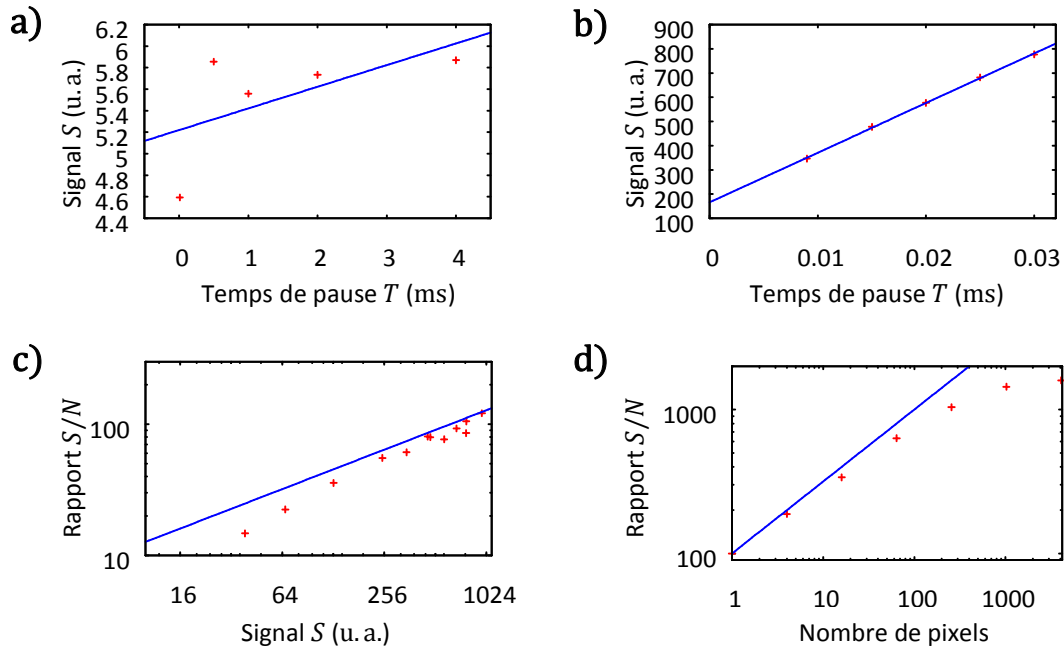


Figure II.9 : Bruit de la caméra.

a) Mesure du courant d'obscurité et du bruit de lecture. La ligne pleine est une régression linéaire $y = ax + b$, où $a = 0,2 \text{ s}^{-1}$ et $b = 5,2$. **b)** Mesure de la réponse du détecteur. La ligne pleine est une régression linéaire. **c)** Mesure du rapport signal sur bruit. Ligne pleine : bruit de photons $f(S) = \sqrt{S}$: pente $1/2$. **d)** Intégration du signal sur plusieurs pixels. Ligne pleine : bruit de photons en racine du nombre de pixel : pente $1/2$.

On a également mesuré le niveau de bruit, c'est-à-dire la déviation standard du signal d'un pixel :

$$N = \sqrt{\langle (S - \bar{S})^2 \rangle}, \quad (\text{II.43})$$

où $\bar{S} = \langle S \rangle$ représente la valeur moyenne du signal. On trace le rapport signal sur bruit \bar{S}/N Figure II.9.c. On constate que le bruit augmente comme la racine du signal. C'est la signature du bruit de photons, ce qui sera vérifié par la suite.

On sait que la caméra atteint sa saturation si elle reçoit une énergie de $\frac{1024}{LSB_{10}} = 21 \text{ nJ.cm}^{-2}$. Par ailleurs, les pixels de la caméra sont des carrés de côtés $e_{pix} = 5,3 \text{ }\mu\text{m}$, soit d'aire $s_{pix} = 28 \text{ }\mu\text{m}^2$. Ainsi, le pixel sature s'il reçoit une énergie de $E_{sat} = 6 \cdot 10^{-15} \text{ J}$. En moyenne, dans le visible, les photons issus de la lampe blanche ont une longueur d'onde moyenne de $\lambda = 500 \text{ nm}$, soit une énergie $\frac{hc}{\lambda} = 4 \cdot 10^{-19} \text{ J}$. Ainsi, le capteur arrive à saturation s'il reçoit environ $1,5 \cdot 10^4$ photons. Au bruit de photons, le rapport signal sur bruit vaudrait $\sqrt{1,5 \cdot 10^4} \approx 120$. Cette valeur est très proche de ce que l'on mesure expérimentalement.

On en conclut que dans les conditions d'utilisation choisies, le capteur de la caméra est limité par le bruit de photons. Dans la suite, nous montrons que des bruits techniques apparaissent lorsque le signal reçu est additionné sur plusieurs pixels adjacents¹⁹.

II.5.3 Bruit technique basse fréquence additionnel

En sommant le signal reçu sur plusieurs pixels adjacents répartis dans un carré, on augmente la quantité de photons que l'on reçoit. La [Figure II.9.d](#) donne le rapport signal sur bruit en fonction de ce nombre de pixels sur lesquels on réalise la somme. On constate que ce rapport commence par évoluer comme la racine du nombre de pixels et suit ainsi la courbe du bruit de photons. Mais il s'en écarte dès que l'on atteint des carrés d'intégration de plus de $8 \times 8 = 64$ pixels.

Ainsi, les pixels sont en fait corrélés par un bruit technique dont l'origine n'est pas connue. Cela limite l'amélioration du rapport signal à bruit par l'augmentation de la surface d'intégration à une valeur d'environ 1 500. Cependant, ce bruit technique basse fréquence peut être moyenné dans la durée si les constantes de temps de la moyenne sont relativement longues (plusieurs dizaines de secondes). Le [Paragraphe III.1.c](#) du [Chapitre III](#) présente deux protocoles qui peuvent être combinés pour intégrer le signal dans le temps.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté notre dispositif de microscopie permettant d'imager la photoluminescence des centres NV. Nous montrons que la résolution spatiale est limitée par diffraction autour de 500 nm. Nous avons détaillé une configuration de pompage des centres NV efficace, permettant de concentrer la puissance de pompe uniquement sur la couche de centres NV. Nous avons également montré que le signal reçu possède une intensité suffisante pour l'utilisation d'une caméra non refroidie, dont les temps de pause, dans les conditions expérimentales usuelles, sont proches de la milliseconde. Enfin, nous montrons que le signal obtenu pour chaque pixel est limité par le bruit de photons.

Tel que montré [Chapitre I \(§ I.6\)](#), cette image « *single shot* » de photoluminescence de la couche de centres NV est au cœur de la méthode de cartographie de champ magnétique à l'échelle microscopique décrite [Chapitre III](#), d'une part, et du principe de l'analyse de spectres de signaux hyperfréquence décrit [Chapitre IV](#), d'autre part.

¹⁹ En anglais, on utilise le terme de *Binning*.

Chapitre III

Cartographie de champ magnétique

Dans ce chapitre, nous détaillons le protocole de mesure utilisant la microscopie de photoluminescence d'une couche de centres NV (*cf.* Chap. II) pour la cartographie des trois composantes d'espace du champ magnétique. Afin d'illustrer notre propos, nous prenons pour référence un champ magnétique généré par un fil de cuivre parcouru par un courant. La Figure III.1 décrit la configuration expérimentale permettant de générer et de mesurer ce champ magnétique. Les résultats de ce chapitre ont été présentés à la conférence « Hasselt Diamond Workshop » en février 2013 [61] et sont en cours de publication [62].

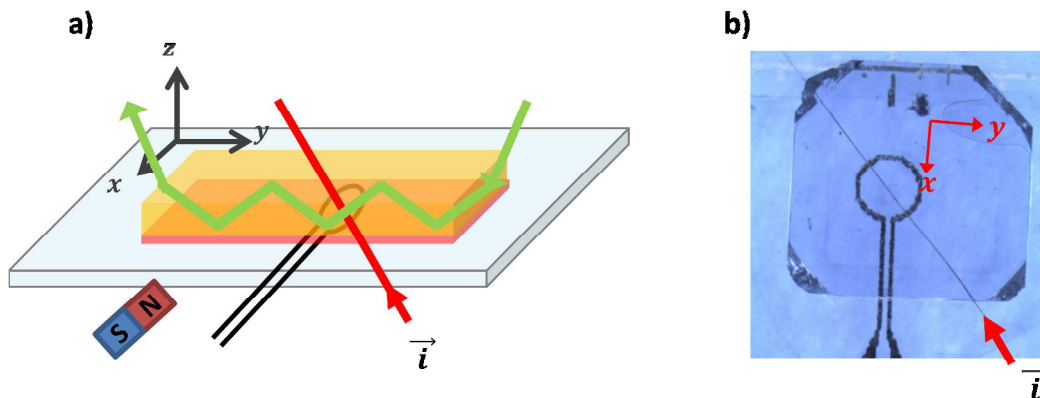


Figure III.1 : Champ magnétique de référence.

a) Le champ magnétique de référence est généré par un fil de cuivre de 20 μm de diamètre, parcouru par un courant électrique de $i = 12 \text{ mA}$. Il est positionné entre la lame de verre, support sur lequel est lithographiée l'antenne micro-onde (*cf.* Ann. II.4), et le diamant sonde. La couche de centres NV est en regard du fil de cuivre, afin qu'elle se trouve au plus près de la source de champ magnétique. Un aimant permanent génère un champ magnétique uniforme supplémentaire qui permet de séparer toutes les résonances (*cf.* § III.2).

b) Photo du dispositif vu de dessus : on distingue l'antenne et le fil de cuivre par transparence.

En premier lieu, nous nous intéressons à l'acquisition des données d'une image de spectres nous permettant de détecter les huit résonances magnétiques de la couche de centres NV (*cf.* § III.1). Ensuite, nous détaillons le protocole qui permet de localiser la position en fréquence de ces résonances magnétiques sur l'ensemble de l'image (*cf.* § III.2). À partir de ces fréquences de résonance, nous montrons la possibilité de reconstruire les trois composantes d'espace de ce champ magnétique dans le référentiel du laboratoire (*cf.* § III.3). Nous présentons la sensibilité magnétique ainsi obtenue, et

proposons une méthode permettant de l'améliorer sensiblement en optimisant le temps de mesure (*cf.* § III.4). Enfin, dans un paragraphe de perspectives, nous présentons une application originale des méthodes décrites : la caractérisation de circuits imprimés par la cartographie de densité de courant.

Contenu

III.1	Acquisition d'une image de spectres ODMR	67
III.1.1	Une rampe de fréquence	67
III.1.2	Données en mémoire et choix du langage informatique.....	67
III.1.3	Intégration du signal pour l'augmentation du rapport signal à bruit.....	68
III.1.4	Une image de spectres ODMR	68
III.1.5	Quatre projections du champ magnétique	69
III.2	Position en fréquence des résonances magnétiques.....	70
III.2.1	Ajustement de courbes lorentziennes	70
III.2.2	Parcours de l'ensemble des données brutes.....	73
III.3	Reconstruction vectorielle du champ magnétique	74
III.3.1	Détermination du signe des projections du champ magnétique	74
III.3.2	Maximum de vraisemblance.....	77
III.4	Sensibilité de la mesure du champ magnétique.....	79
III.4.1	Optimum de sensibilité.....	79
III.4.2	Performance de l'algorithme d'ajustement.....	83
III.4.3	Acquisitions différentielles	86
III.4.4	Discussion sur les limitations de la sensibilité.....	88
III.5	Perspectives, application à la micro-électronique	90
	Conclusion.....	93

III.1 Acquisition d'une image de spectres ODMR²⁰

III.1.1 Une rampe de fréquence

Afin de détecter les résonances magnétiques, les centres NV sont soumis à un champ micro-onde dont la fréquence ν varie. L'antenne émettrice est décrite [Chapitre II \(§ II.4\)](#). En pratique, il faut choisir les bornes ν_{Min} et ν_{Max} ainsi que l'échantillonnage ν_e d'une rampe de fréquence linéaire, laquelle est alors parcourue pas à pas. La caméra associe une image de la luminescence de la couche de centres NV à chaque pas de la rampe de fréquence.

On note N_{Ech} le nombre d'acquisitions pour une rampe de fréquence :

$$N_{Ech} = 1 + \frac{\nu_{Max} - \nu_{Min}}{\nu_e}. \quad (\text{III.1})$$

III.1.2 Données en mémoire et choix du langage informatique

On note :

- (x', y') les coordonnées spatiales qui permettent de repérer les pixels de la caméra²¹ ;
- ν la fréquence ;
- S l'intensité de luminescence lue sur le pixel de la caméra.

L'acquisition de la rampe de fréquence renvoie un volume de données $S(x', y', \nu)$ renseignant, pour chaque pixel (x', y') de l'image, et pour chaque fréquence ν de la rampe de fréquences, la valeur de l'intensité de photoluminescence reçue.

Considérons une image plein format de $1\,280 \times 1\,024$ pixels, codée sur 2 octets, avec, par exemple, 500 échantillons dans la rampe de fréquence. On obtient un volume de données supérieur à un gigaoctet. C'est l'anticipation de ce volume de données qui a orienté notre choix vers le langage de programmation bas niveau, C++. Ce langage nous permet de contrôler précisément l'allocation de la mémoire vive, de sorte que ces données restent accessibles rapidement par le programme, tant pour leur acquisition que pour leur traitement. Les temps de calcul sont ainsi optimisés. Par ailleurs, l'organisation en programmation objet C++ permet de créer facilement des ensembles logiques qui favorisent l'appréhension du programme à différents niveaux de détail.

²⁰ *Optically Detected Magnetic Resonance*.

²¹ Comme définie Chapitre II, les coordonnées (x, y) sont réservées aux grandeurs proches du diamant, tandis que (x', y') repère les pixels sur la caméra. En réalité, la caméra est alignée de sorte que ces axes coïncident.

III.1.3 Intégration du signal pour l'augmentation du rapport signal à bruit

Comme détaillé [Paragraphe II.5.2](#), le rapport signal sur bruit de la luminescence reçue par la caméra est typiquement proche de 100 pour une rampe d'acquisition unique. Ceci ne nous permet pas de visualiser confortablement les résonances magnétiques, dont les contrastes sont généralement inférieurs à 2 % ([cf. § III.4](#)). Il faut donc moyenner plusieurs images pour chaque échantillon de fréquence de la rampe. Nous avons testé deux manières différentes d'effectuer ce moyennage :

- au cours de la rampe de fréquences, à chaque pas de fréquence, on acquiert une série de N_{Acq} images, que l'on somme au fur et à mesure ;
- on effectue N_{Ram} rampes identiques, que l'on somme.

Ces deux méthodes peuvent être combinées, de sorte que la durée totale de l'acquisition soit telle que :

$$T_{Tot} = N_{Acq} \cdot N_{Ram} \cdot N_{Ech} \cdot T, \quad (III.2)$$

où :

- T est le temps d'exposition de la caméra ([cf. § II.5.2](#)) ;
- N_{Ech} est le nombre d'échantillons de la rampe de fréquences ([cf. § III.1](#)).

La seconde méthode présente également l'avantage de moyenner le bruit technique basse fréquence ([cf. § II.5.3](#)). Par ailleurs, étant donné l'architecture du code C++ que nous avons choisi, le calcul informatique de la somme est beaucoup plus rapide avec cette technique d'intégration temporelle qu'avec l'autre. Cette seconde méthode est donc utilisée la plupart du temps.

III.1.4 Une image de spectres ODMR

On obtient finalement une matrice de données moyennées contenant la valeur de la luminescence S dans les trois directions de l'espace (x', y', ν) . On peut interpréter ces données comme un ensemble d'images de luminescence à toutes les fréquences ν .

Une seconde interprétation consiste à considérer ce volume de données comme une image pour laquelle chaque pixel de coordonnées spatiales (x', y') présente un spectre de photoluminescence en fonction de la fréquence micro-onde ν ([cf. Fig. III.2.c](#)). Nous appelons cette image : « image de spectre ». La [Figure III.2](#) donne une représentation visuelle d'une telle image de spectre. Notre diamant sonde, ici le « Adv-sc-19 », excité avec une puissance de pompe de 150 mW, mesure le champ magnétique de référence créé par un fil ([cf. Fig. III.1](#)). Dans ce cas, un ensemble de $N_{Ram} = 16$ rampes a été utilisé pour cette acquisition. L'échantillonnage vaut $\nu_e = 1$ MHz pour une excursion en fréquence $\nu_{Span} = 300$ MHz. La puissance micro-onde envoyée à l'antenne vaut $P_{MW} = 25$ dBm.

III.1.5 Quatre projections du champ magnétique

Comme nous l'avons décrit [Chapitre I \(§ I.5\)](#) chaque centre NV possède deux résonances magnétiques, correspondant respectivement aux transitions $|m_s = 0\rangle \rightarrow |m_s = -1\rangle$ et $|m_s = 0\rangle \rightarrow |m_s = +1\rangle$. La distance en terme de fréquence donne la projection du champ magnétique sur l'axe du centre NV.

Le cristal de diamant possède quatre axes de symétries (*cf.* [Chap. I § I.2](#)). Suite à l'implantation des atomes d'azote, les centres NV formés sont répartis de manière équivalente selon ces quatre directions (*cf.* [Chap. II § II.1](#)). On obtient donc quatre classes de centres NV selon les quatre axes cristallographiques du diamant, donnant la valeur absolue de la projection du champ magnétique sur chacun de ces axes. Ces huit résonances magnétiques sont visibles sur les spectres ODMR de la [Figure III.2](#).

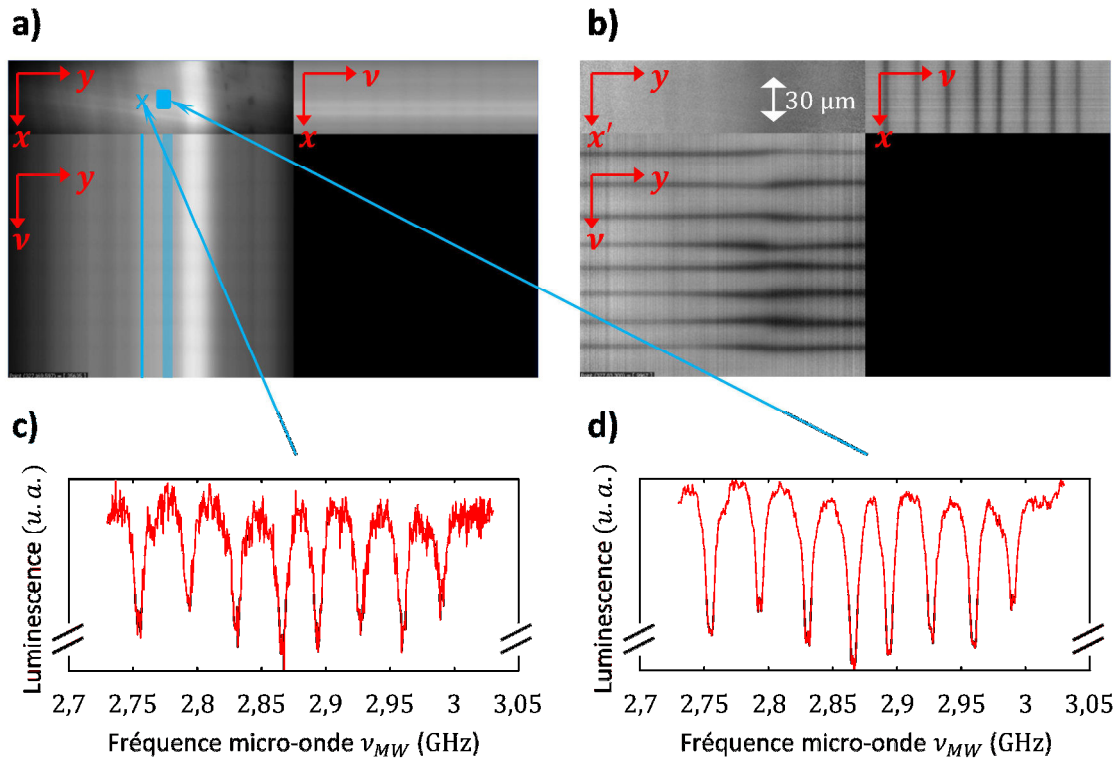


Figure III.2 : Images de spectres ODMR.

- a)** Représentation des données brutes. La partie en haut à gauche montre l'image de la luminescence à une fréquence ν_i donnée ; chaque pixel est repéré par ses coordonnées (x', y') . La partie en bas à gauche est une coupe à un y_p particulier ; chaque pixel est repéré par ses coordonnées (x', ν_i) et donne la luminescence en fonction de y_p . La partie en haut à droite est l'analogue du précédent, mais à un x_p particulier. Sur ces deux coupes, on peut repérer les résonances magnétiques par des lignes plus sombres.
- b)** Représentation des données normalisées. Cette image est analogue à la première dans laquelle chaque pixels est normalisé par sa valeur moyenne sur l'ensemble des fréquences ν . De cette manière, la dynamique de l'image ne dépend plus de la modulation spatiale du profil de la pompe. Il est alors plus aisé de repérer les résonances magnétiques.
- c)** Spectre de luminescence : le signal S reçu par un pixel de la caméra (« x » bleu sur **a**)) en fonction de ν .
- d)** Spectre analogue : signal moyenné sur un ensemble de $10 \times 10 = 100$ pixels (carré bleu sur **a**)).

III.2 Position en fréquence des résonances magnétiques

III.2.1 Ajustement de courbes lorentziennes

Dans ce paragraphe, nous décrivons une méthode permettant de calculer précisément la position des pics de résonance à l'intérieur d'un spectre. La Figure III.3 présente un zoom sur une résonance d'un spectre analogue aux précédents, prenant en compte le signal reçu sur 10×10 pixels. L'ajustement d'un couple de lorentziennes (cf. Chap. I § I.5.3), distantes de $\nu_{Hyp} = 3$ MHz, permet de rendre compte de l'interaction hyperfine entre le spin électronique du centre NV et le spin nucléaire de l'atome d'azote. Cependant, bien qu'une unique lorentzienne ne s'ajuste pas aussi bien aux données, on constate expérimentalement que le *fit* renvoie la position avec la même précision. Dans ce paragraphe, nous approximations chaque résonance à une lorentzienne unique, telle que présenté Figure III.3.

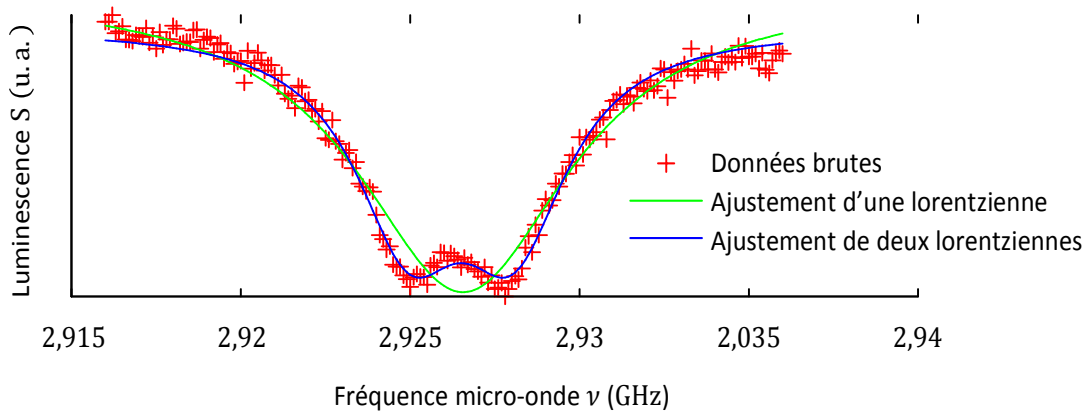


Figure III.3 : Résonance sur un spectre de luminescence, ajustement de lorentziennes.

Soit $\text{lor}(x) = \frac{1}{1+x^2}$ une courbe lorentzienne d'amplitude unité, S_0 la valeur de la ligne de base du spectre à traiter, C_i le contraste de la raie ODMR (cf. Chap. I § I.5.2) : $\Delta\nu_i$ est la largeur à mi-hauteur de la courbe, et ν_i est la position de cette courbe. On peut alors écrire la fonction d'ajustement $f_{Aj}(\nu)$:

$$f_{Aj}(\nu) = S_0 \left\{ 1 - \sum_{i=1}^8 C_i \cdot \left[\text{lor} \left(\frac{\nu - \nu_i}{\Delta\nu_i} \right) \right] \right\}, \quad (\text{III.3})$$

où la somme s'effectue sur les huit résonances ODMR présentes dans le spectre. Soit :

- ν_{i-} la fréquence de la transition $|m_s = 0\rangle \rightarrow |m_s = -1\rangle$;
- ν_{i+} celle de la transition $|m_s = 0\rangle \rightarrow |m_s = +1\rangle$;
- $\nu_{im} = \frac{\nu_{i+} + \nu_{i-}}{2}$;
- $D\nu_i = \nu_{i+} - \nu_{i-}$.

Nous faisons le choix de regrouper les raies ODMR deux à deux, pour faire apparaître la distance Dv_i directement dans la fonction d'ajustement. C'est cette grandeur qui est, en première approximation, proportionnelle à la valeur absolue de la projection du champ magnétique sur l'axe. De ce fait :

$$v_{i-} = v_{im} - \frac{1}{2} Dv_i \quad \text{et} \quad v_{i+} = v_{im} + \frac{1}{2} Dv_i. \quad (\text{III.4})$$

Enfin, le contraste C_i et la largeur à mi-hauteur δv_i sont imposés identiques pour les deux raies ODMR d'une même classe de centres NV. On obtient :

$$f_{Aj}(v) = S_0 \left\{ 1 - \sum_{i=a,b,c,d} C_i \cdot \left[\text{lor} \left(\frac{v - v_{i-}}{\Delta v_i} \right) + \text{lor} \left(\frac{v - v_{i+}}{\Delta v_i} \right) \right] \right\}. \quad (\text{III.5})$$

Désormais, la somme s'effectue uniquement sur les quatre axes de symétrie du diamant, notés (a), (b), (c) et (d) (cf. Fig. III.4.b) et choisis tel que :

$$Dv_a < Dv_b < Dv_c < Dv_d. \quad (\text{III.6})$$

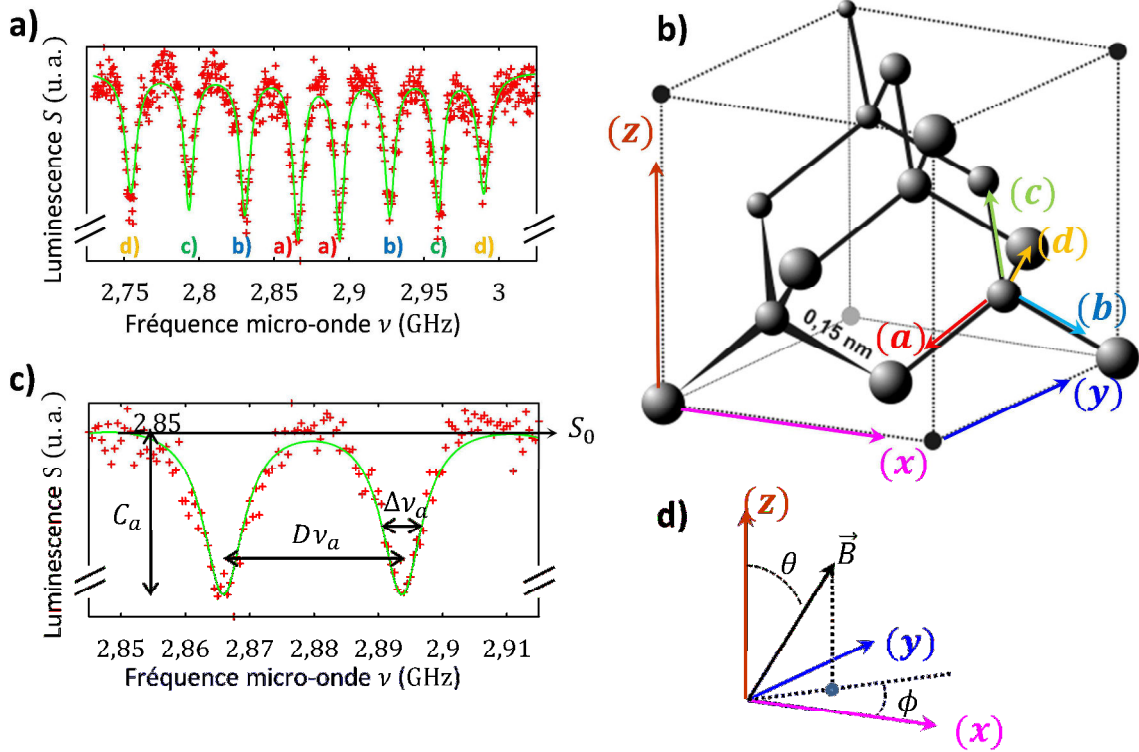


Figure III.4 : Un spectre, quatre projections du champ magnétique.

- a) Spectre de luminescence en un pixel de l'image. En trait plein : le *fit* par la fonction $f(v)$. On attribue les couples de raies ODMR à chaque classe de centres NV.
- b) Représentation des quatre axes où l'on mesure les projections du champ magnétique.
- c) Définition des paramètres des lorentziennes de la fonction d'ajustement.
- d) Représentation de \vec{B} en coordonnées sphériques.

L'ajustement de cette courbe permet de fixer ces dix-sept paramètres : S_0 , les C_i , les $\Delta\nu_i$, les $\delta\nu_i$ et les ν_{im} .

Le *fit* est implémenté en C++ dans le programme d'acquisition. Nous utilisons la bibliothèque minlm de alglib²², basée sur la méthode de Lavenberg et Marquardt [63, 64]. Elle est fondée sur le calcul de l'écart quadratique moyen entre la fonction de *fit* $f(\nu)$ et les données expérimentales, et sur celui de la jacobienne de la fonction.

Nous avons constaté expérimentalement que le *fit* est assez robuste. Il requiert néanmoins trois conditions :

- la présélection des dix-sept paramètres d'ajustement doit être relativement proche des valeurs finales. En particulier, il faut que les couples de raies soient attribués de manière non ambiguë. Dans le cas contraire, l'algorithme risque de placer plusieurs raies en une seule, et d'en oublier d'autres. Une présélection de ces paramètres est enregistrée dans un fichier interfacé ;
- les raies ODMR doivent sortir au moins légèrement du bruit. En pratique, le rapport signal sur bruit doit être au moins deux fois supérieur à l'inverse du contraste de raie. Pour une acquisition sans moyennage (pour une rampe de fréquence unique), on a $\frac{S}{N} \approx 100$ (cf. § II.5.2), tandis que les raies ODMR ont des contrastes $C_i \approx 1\%$. (cf. § III.4.4). De cette manière, le moyennage de quatre rampes d'acquisition (ou la prise de quatre images par échantillonnage de fréquence (cf. § III.1.3) est suffisant pour extraire les positions des lorentziennes de manière fiable ;
- l'échantillonnage ν_e doit être suffisant pour qu'au moins deux ou trois mesures soient possibles dans une raie ODMR. Pour une largeur de raie d'environ $\delta\nu_i = 7$ MHz (cf. § III.4.1), un échantillonnage $\nu_e = 2$ MHz suffit.

Il en résulte que pour un spectre de $\nu_{span} = 300$ MHz d'excursion en fréquence ($N_{Ech} = 150$), la durée minimale d'acquisition pour que les données puissent être traitées par l'algorithme d'ajustement de lorentzienne se déduit de l'Équation (III.2) :

$$\min(T_{Tot}) = 600 \text{ ms}, \quad (\text{III.7})$$

où l'on a choisi :

$$N_{Ech} = 150, N_{Acq} = 1, N_{Ramp} = 4 \text{ et } T = 1 \text{ ms}. \quad (\text{III.8})$$

La durée d'exécution de l'algorithme d'ajustement varie fortement avec le nombre d'échantillons N_{Ech} de la rampe de fréquence, le nombre de paramètres à ajuster²³ et, bien évidemment, avec les performances de l'ordinateur utilisé. Typiquement, pour $N_{Ech} = 601$, le *fit* de l'ensemble des paramètres pour un spectre donné dure environ $T_{Fit} = 25$ ms. Le *fit* d'une image de 100×100 pixels durera donc 40 min environ. On peut choisir de maintenir fixe un ou plusieurs paramètres d'ajustement, pour optimiser le temps de calcul sur les paramètres d'intérêts : le *fit* fonctionne encore

²² www.alglib.net.

²³ La jacobienne à calculer est une matrice de taille $N_{Ech} \times N_{param}$.

parfaitement si seuls S_0 et le $\Delta\nu_i$ sont libres. Cependant, les résultats que nous montrons ici sont tous issus de l'ajustement des dix-sept paramètres.

La précision des résultats de la routine d'ajustement en terme de sensibilité magnétique est discutée [paragraphe III.4.2](#).

III.2.2 Parcours de l'ensemble des données brutes

Il nous faut maintenant parcourir l'ensemble de l'image de spectre afin d'extraire, pour chaque pixel de coordonnées (x', y') , les valeurs de $D\nu_a(x', y')$, $D\nu_b(x', y')$, $D\nu_c(x', y')$ et $D\nu_d(x', y')$. Par ailleurs, afin que la routine d'ajustement ne se « perde » pas si les paramètres sont très variables, il nous faut réutiliser les résultats de l'ajustement en tant que présélection pour le *fit* suivant, et ainsi parcourir l'image de proche en proche. La première solution implémentée est présentée [Figure III.5.a](#).

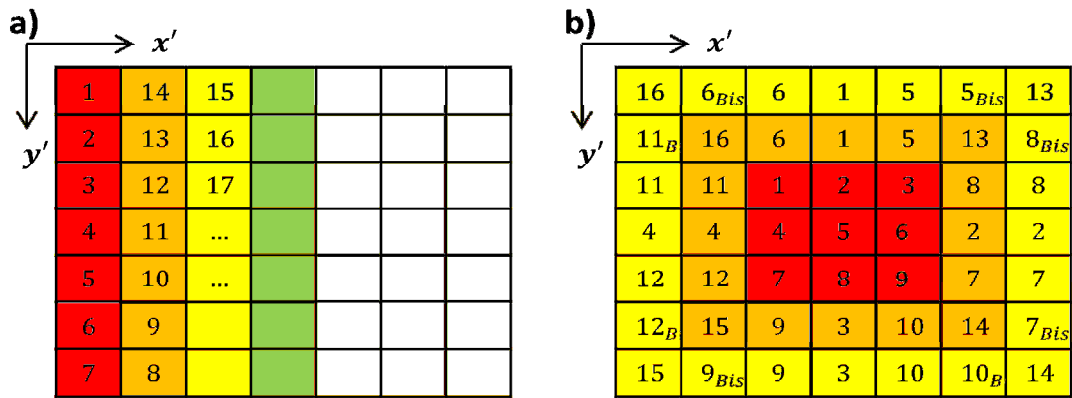


Figure III.5 : Parcours de l'image de spectre.

a) Parcours en partant du coin en haut à gauche. Chaque case du tableau représente un pixel de l'image. Le sens de parcours est donné par l'ordre croissant des numéros : l'image est parcourue colonne par colonne, en commençant par la colonne rouge, puis la colonne orange, puis la jaune, etc.

b) Parcours en partant du centre de l'image. On commence par le carré central rouge, puis on ajoute les pixels adjacents en orange, dans l'ordre des numéros. S'en suivent les pixels jaunes, toujours dans l'ordre croissant. Par souci de lisibilité, on recommence la numérotation à 1 pour chaque couronne : 5_{Bis} est traité après 5, mais avant 6. Puis vient 6_{Bis}, etc.

L'image est parcourue colonne par colonne. L'inconvénient majeur de cette méthode est que le point de départ se trouve dans un coin de l'image, c'est-à-dire généralement à l'endroit où la puissance de pompe est plus faible et où les données sont noyées dans le bruit. Même dans le cas où les premiers pixels sont correctement traités, la routine d'ajustement risque de se perdre chaque fois qu'elle traite des pixels en bordure. Une fois la routine perdue, les résultats seront erronés pour tous les pixels traités ultérieurement.

Une seconde solution, présentée [Figure III.5.b](#), a été imaginée. Les neuf pixels du centre de l'image (en rouge) sont traités en premier, afin de profiter au maximum des

zones largement éclairées. On utilise alors une présélection manuelle des paramètres d'ajustement pour ces neuf pixels. Puis la première couronne (en orange) est traitée, dans l'ordre croissant des numéros de la [Figure III.5.b](#). Ce parcours permet d'utiliser les résultats de trois pixels plus proches voisins déjà traités comme présélection pour l'ajustement suivant. De cette manière, la routine d'ajustement demeure très robuste sur l'ensemble de l'image, sauf lorsque la puissance de pompe diminue trop drastiquement dans les coins.

La [Figure III.6.b](#) présente les quatre projections du champ magnétique B_a , B_b , B_c et B_d ainsi obtenues en fonction des coordonnées (x', y') . Les signes respectifs des B_i restent à déterminer.

III.3 Reconstruction vectorielle du champ magnétique

III.3.1 Détermination du signe des projections du champ magnétique

On souhaite à présent connaître le champ magnétique dans le référentiel du laboratoire. Le diamant est coupé selon les plans cristallographiques de type [100] ([cf. Chap. II \(§ II.1.2.4\)](#)). Les axes (x, y, z) sont alors définis comme sur la [Figure III.4.b](#). Les arêtes du diamant macroscopique suivent exactement les axes de la maille cristallographique. Soit \vec{u}_i le vecteur unitaire dans la direction (i) , (i) pouvant être (x) , (y) et (z) , mais également les axes de symétrie du diamant (a) , (b) , (c) et (d) . On a alors, selon la [Figure III.4.b](#) :

$$\begin{aligned} \vec{u}_a &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ -1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} & \vec{u}_b &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} \\ \vec{u}_c &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} & \vec{u}_d &= \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix}_{(x,y,z)} \end{aligned} \quad (\text{III.9})$$

Les axes (x) , (y) et (z) sont définis par rapport à (a) , (b) , (c) et (d) , lesquels sont choisis de manière arbitraire ([cf. Éq. \(III.6\)](#)). La base (x, y, z) n'est donc pas entièrement définie à ce stade. Par exemple, elle n'est pas forcément directe. Pour le moment, on sait seulement que (x) , (y) et (z) suivent chacun l'une des directions (100), c'est-à-dire l'une des arêtes de l'échantillon de diamant ([cf. Fig. III.1](#)).

Du fait de la symétrie centrale du diamant, on a :

$$\vec{u}_a + \vec{u}_b + \vec{u}_c + \vec{u}_d = \vec{0}. \quad (\text{III.10})$$

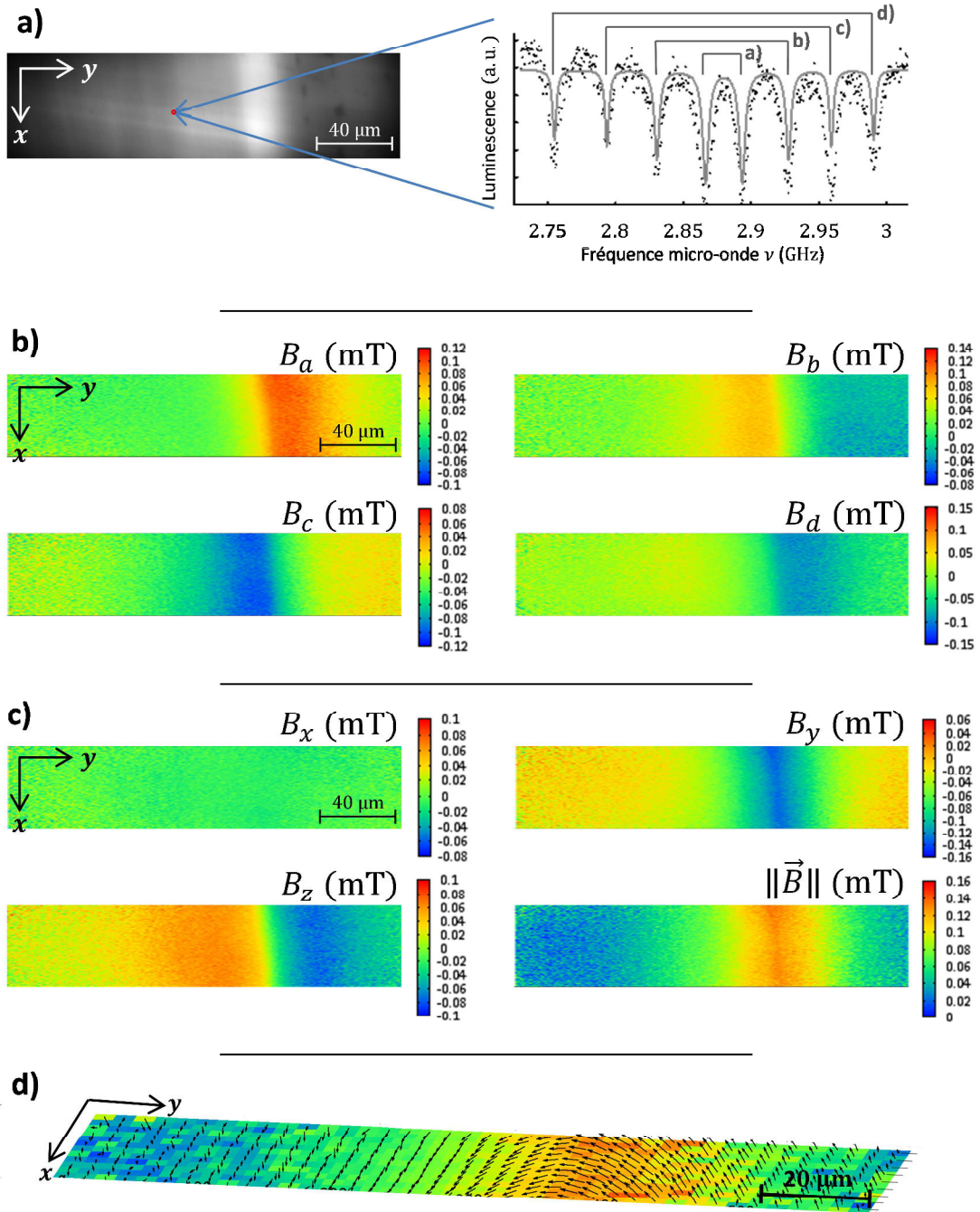


Figure III.6 : Illustration des étapes de la reconstruction vectorielle du champ magnétique de référence.

a) Image de photoluminescence d'une couche de centres NV à une fréquence donnée (à gauche). Les données brutes sont composées d'un spectre ODMR (à droite) complet pour chaque pixel.

b) Mesure des projections du champ magnétiques sur les quatre directions cristallographiques du diamant (a), (b), (c) et (d), calculées en chaque pixel par l'algorithme d'ajustement de lorentziennes (cf. § III.2).

c) Reconstruction du champ magnétique selon les axes du laboratoire (x), (y) et (z) (cf. Fig. III.4) et de sa norme, à partir de la méthode de maximum de vraisemblance (cf. § III.3).

d) Représentation vectorielle du champ magnétique dans la base du laboratoire.

Soit \vec{B} le champ magnétique que l'on cherche à mesurer. Soit B_i la projection de ce champ sur la direction i : $B_i = \vec{B} \cdot \vec{u}_i$. On a alors $\vec{B} = \begin{pmatrix} B_x \\ B_y \\ B_z \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$ dans la mesure où $(\vec{u}_x, \vec{u}_y, \vec{u}_z)$ est une base orthonormée. Il s'agit des valeurs des projections de \vec{B} que l'on mesurerait si le système était parfaitement exempt de bruit.

Par ailleurs, on a :

$$\begin{aligned} B_a &= \frac{\sqrt{3}}{3}(-B_x - B_y - B_z) & B_b &= \frac{\sqrt{3}}{3}(B_x + B_y - B_z) \\ B_d &= \frac{\sqrt{3}}{3}(B_x - B_y + B_z) & B_c &= \frac{\sqrt{3}}{3}(-B_x + B_y + B_z). \end{aligned} \quad (\text{III.11})$$

En effectuant le produit scalaire de l'Equation (III.10) par \vec{B} , on obtient :

$$B_a + B_b + B_c + B_d = 0, \quad (\text{III.12})$$

et, selon la convention de l'Equation (III.6), on a :

$$|B_a| < |B_b| < |B_c| < |B_d|. \quad (\text{III.13})$$

On note m_a , m_b , m_c et m_d les mesures des B_i que l'on cherche à déterminer à partir des données. Leur valeur absolue est imposée par la mesure de l'effet Zeeman, selon l'équation rappelée ici (cf. Chap. I § 1.4) :

$$\begin{aligned} \nu^\pm &= \nu^0 \pm \frac{g\mu_B}{h} \cdot B_{NV} \\ D\nu &= \nu^+ - \nu^- = 2 \cdot \frac{g\mu_B}{h} \cdot B_{NV}, \end{aligned} \quad (\text{III.14})$$

Leurs signes respectifs restent indéterminés, du fait que l'on ne mesure qu'une distance : $m_i = \pm \frac{D\nu_i}{g\mu_B}$. Il nous faut donc déterminer les signes des m_i (ou des B_i). Si l'on admet que l'on ne peut distinguer un champ magnétique de son opposé, on peut prendre par convention : $B_d > 0$. Il ne reste à déterminer que les signes relatifs des autres B_i .

Supposons $m_c > 0$. Dans ce cas, la plus petite quantité que l'on puisse former est :

$$-D\nu_a - D\nu_b + D\nu_c + D\nu_d. \quad (\text{III.15})$$

Comme $D\nu_b - D\nu_a > 0$ et $D\nu_d - D\nu_c > 0$, cette quantité est toujours strictement positive et ne peut satisfaire l'Equation (III.12). De cette manière, on a $m_c = -D\nu_c < 0$.

Supposons $m_b > 0$. La plus petite quantité que l'on puisse former est :

$$-D\nu_a + D\nu_b - D\nu_c + D\nu_d. \quad (\text{III.16})$$

De même, selon l'Equation (III.13), cette quantité est strictement positive et ne peut satisfaire l'Equation (III.12). De cette manière, on a $m_d = -D\nu_d < 0$.

De cette manière, seul le signe de B_a , noté ϵ , est libre. En l'absence de bruit, on connaîtrait parfaitement les valeurs signées des B_i pour $i = a \dots c$, et B_a se déduirait de

l'Équation (III.12). En présence de bruit, le signe de B_a est déterminé en minimisant la quantité :

$$|\pm Dv_a + Dv_b - Dv_c + Dv_d|. \quad (\text{III.17})$$

Ce qui ne laisse généralement aucune ambiguïté.

III.3.2 Maximum de vraisemblance

La mesure expérimentale est entâchée de bruit. En l'absence d'information supplémentaire, ce bruit est supposé être gaussien et de variance σ^2 , et identique sur les quatre projections de mesure. Les origines de ce bruit seront discutées [Paragraphe III.4.1](#). Soit $p_i = p(m_i|\vec{B})$ la probabilité de mesurer m_i sur la projection i sachant \vec{B} :

$$p_i = \alpha \cdot \exp\left(-\frac{(B_i - m_i)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (\text{III.18})$$

où α est un facteur de normalisation, de sorte que $\int_{m_i=-\infty}^{+\infty} p_i = 1$.

Ainsi, la probabilité $p = p(m_a, m_b, m_c, m_d|\vec{B})$ de mesurer m_a , m_b , m_c , et m_d , connaissant \vec{B} , s'écrit :

$$\begin{aligned} p &= \prod_{i=a,b,c,d} p_i \\ p &= \alpha^4 \exp\left(-\sum_{i=a,b,c,d} \frac{(B_i - m_i)^2}{2\sigma^2}\right). \end{aligned} \quad (\text{III.19})$$

Selon le théorème de Bayes, on peut inverser cette probabilité et l'interpréter comme la vraisemblance que le champ réel soit égal à \vec{B} , sachant que l'on a effectivement mesuré m_a, m_b, m_c et m_d :

$$p(\vec{B}|m_a, m_b, m_c, m_d) \propto p(m_a, m_b, m_c, m_d|\vec{B}). \quad (\text{III.20})$$

De cette manière, la valeur de \vec{B} correspondant au maximum de vraisemblance, connaissant les mesures m_i , se calcule en maximisant l'argument de l'exponentiel en fonction de \vec{B} , c'est-à-dire en recherchant les zéros de ses dérivées partielles par rapport aux trois composantes du champ B_x , B_y et B_z . Si on note A cet argument, on a :

$$A = \sum_{i=a,b,c,d} \frac{(B_i - m_i)^2}{2\sigma^2}, \quad (\text{III.21})$$

que l'on développe comme suit, pour faire apparaître les B_x , B_y et B_z :

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{2\sigma^2} \left[\left(\frac{\sqrt{3}}{3} (-B_x - B_y - B_z) - m_a \right)^2 + \left(\frac{\sqrt{3}}{3} (B_x + B_y - B_z) - m_b \right)^2 \right. \\ &\quad \left. + \left(\frac{\sqrt{3}}{3} (-B_x + B_y + B_z) - m_c \right)^2 + \left(\frac{\sqrt{3}}{3} (B_x - B_y + B_z) - m_d \right)^2 \right]. \end{aligned} \quad (\text{III.22})$$

Par exemple, le calcul de la dérivé partielle par rapport à B_x donne :

$$\begin{aligned}\frac{\partial A}{\partial B_x} &\propto 2[(-B_x - B_y - B_z - m_a) + (B_x + B_y - B_z - m_b) \\ &\quad - (-B_x + B_y + B_z - m_c) + (B_x - B_y + B_z - m_d)] \\ \frac{\partial A}{\partial B_x} &\propto 4 \frac{\sqrt{3}}{3} B_x + m_a - m_b + m_c - m_d.\end{aligned}\tag{III.23}$$

B_x est obtenue en annulant cette dérivée partielle : $\frac{\partial A}{\partial B_x} = 0$; B_y et B_z sont obtenues de manière analogue :

$$\begin{aligned}B_x &= \frac{\sqrt{3}}{4} (-m_a + m_b - m_c + m_d) \\ B_y &= \frac{\sqrt{3}}{4} (-m_a + m_b + m_c - m_d) \\ B_z &= \frac{\sqrt{3}}{4} (-m_a - m_b + m_c + m_d).\end{aligned}\tag{III.24}$$

Ces formules présentent l'avantage d'être symétriques pour les quatre composantes (a) (b), (c) et (d). Elles utilisent la redondance de la mesure sur ces quatre axes. Cela se traduit par un gain sensible sur la sensibilité de la mesure (cf. § III.4.1).

Dans le cas où la valeur de l'un des $D\nu_i$ (par exemple $D\nu_a$) n'est pas disponible²⁴, un calcul similaire partant de l'Equation (III.22), où l'on a retiré le terme en (a), donne :

$$\begin{aligned}B_x &= \frac{\sqrt{3}}{2} (m_b + m_d) \\ B_y &= \frac{\sqrt{3}}{2} (m_b + m_c) \\ B_z &= \frac{\sqrt{3}}{2} (m_c + m_d).\end{aligned}\tag{III.25}$$

Ce résultat se retrouve simplement à partir de l'Equation (III.24) en écrivant $m_a = -m_b - m_c - m_d$ (cf. Éq. (III.12)). Cependant, la démonstration qu'il s'agit bien des meilleurs estimateurs du champ réel est plus complexe que précédemment, du fait de la perte de la symétrie du problème. Les quatre directions ne jouent plus des rôles équivalents, et les équations données par l'annulation des dérivées partielles $\frac{\partial A}{\partial B_i} = 0$ pour $i = x, y, z$ restent couplées.

Le résultat, c'est-à-dire la cartographie du champ magnétique créé par notre configuration de référence dans la base du laboratoire, est donné Figure III.6 (c & d). Dans ce cas, on connaît, à priori, la forme que doit prendre le champ magnétique. On est donc en mesure de déterminer les incertitudes qui demeurent sur les axes de la base. Dans un cas général, sans connaissance à priori de la direction du champ magnétique que l'on souhaite étudier, la levée des indéterminations peut se faire par l'ajout d'un

²⁴ $D\nu_a$ peut être trop petit, de sorte que l'on ne distingue pas l'effet du champ magnétique du *zero field splitting*, ou $D\nu_a$ peut être en dehors de l'intervalle de fréquences.

champ dont la direction est connue²⁵. D'autres méthodes peuvent être envisagées, en jouant sur la polarisation du faisceau de pompe ou de l'excitation micro-onde. En effet, les couplages entre ces champs d'excitation et le centre NV dépendent de la polarisation de ces champs par rapport à la direction du centre NV [65]. Une modulation du contraste d'une résonance magnétique par ce biais renseigne donc sur la direction cristallographique associée à cette résonance.

III.4 Sensibilité de la mesure du champ magnétique

III.4.1 Optimum de sensibilité

Dans ce paragraphe, on cherche à déterminer les plus petites variations de champ magnétique que l'on peut espérer déceler par la détection du signal de luminescence sur un pixel de la caméra, par le déplacement en fréquence des résonances magnétiques. On commence par déterminer l'incertitude de la mesure sur les axes cristallographiques (a), (b), (c) et (d), avant d'en déduire l'incertitude de la mesure sur les coordonnées cartésiennes (x), (y) et (z) à partir des équations du paragraphe précédent.

III.4.1.1 Théorie

On considère le signal de luminescence S reçu sur un pixel de la caméra pour un temps d'exposition T . Ici, il nous faut distinguer le signal S , entaché de bruit, de son espérance $\bar{S} = \langle S \rangle$. On cherche à déterminer les plus petites variations δB_i d'une projection du champ magnétique \vec{B} sur un axe cristallographique (i) que l'on peut détecter. Au niveau infinitésimal, les variations de \bar{S} avec B_i s'écrivent :

$$d\bar{S} = \frac{\partial \bar{S}}{\partial B_i} dB_i. \quad (\text{III.26})$$

Le niveau de bruit N est défini comme l'écart quadratique moyen de S :

$$N = \sqrt{\langle (S - \bar{S})^2 \rangle}. \quad (\text{III.27})$$

La quantité dB_i sera détectable si la variation induite $d\bar{S}$ excède ce niveau de bruit N :

$$d\bar{S} \geq N. \quad (\text{III.28})$$

Ainsi, de manière évidente, la détectivité sera d'autant meilleure si l'on se place à un endroit où $\frac{\partial \bar{S}}{\partial B_i}$ est grand. Le minimum de détectivité s'écrit :

²⁵ Par exemple, on peut facilement ajouter un champ selon l'axe (z), en faisant passer un courant continu dans l'antenne micro-onde.

$$dB_i^{min} = \frac{N}{\max\left(\frac{\partial \bar{S}}{\partial B_i}\right)}. \quad (\text{III.29})$$

Par ailleurs, le champ magnétique B_i est lié à la position ν_i de la résonance magnétique par l'effet Zeeman (*cf.* Chap. I § I.4), rappelé dans L'Équation (III.14). L'Équation (III.29) devient :

$$dB_i^{min} = \frac{h}{g\mu_B} \cdot \frac{N}{\max\left(\frac{\partial \bar{S}}{\partial \nu}\right)}. \quad (\text{III.30})$$

Au voisinage d'une résonance magnétique (i), le signal de luminescence chute en fonction de la fréquence micro-onde ν selon un profil lorentzien :

$$\bar{S}(\nu) = S_0 \left(1 - C \cdot \text{lor}\left(\frac{\nu - \nu_m}{\Delta\nu}\right) \right), \quad (\text{III.31})$$

où S_0 est la hauteur de la ligne de base, C le contraste de la résonance, ν_m la position de la raie, $\Delta\nu$ sa largeur à mi-hauteur et $\text{lor}(x) = \frac{1}{1+x^2}$ une lorentzienne d'amplitude unité. La Figure III.7 présente un zoom sur une telle résonance à partir d'un spectre ODMR expérimental.

Le maximum de $\frac{\partial \bar{S}}{\partial \nu}$ est obtenu sur le flanc de la résonance au voisinage de la mi-hauteur. Il vaut :

$$\max\left(\frac{\partial \bar{S}}{\partial \nu}\right) = p_f \cdot \frac{C \cdot S_0}{\Delta\nu}, \quad (\text{III.32})$$

où p_f est un facteur dépendant du profil de pic de résonance. Dans notre cas, les pics de résonance sont de type lorentziens (*cf.* Chap. I § I.5.3). Ce facteur est tel que²⁶ :

$$\begin{aligned} \frac{1}{p_f} &= \sqrt{\frac{2}{8 \ln(2)}} \\ &= 0,77. \end{aligned} \quad (\text{III.33})$$

Enfin, on note $S/N = S_0/N$ le rapport signal à bruit retourné par le pixel de la caméra pour un temps d'exposition T (*cf.* Chap. II § II.4). On obtient finalement :

$$dB_i^{min} = \frac{1}{p_f} \cdot \frac{h}{g\mu_B} \cdot \frac{\Delta\nu}{C \cdot S/N}. \quad (\text{III.34})$$

²⁶ À titre indicatif, pour un profil gaussien, p_f est tel que $\frac{1}{p_f} = \frac{3\sqrt{3}}{4} = 0,70$.

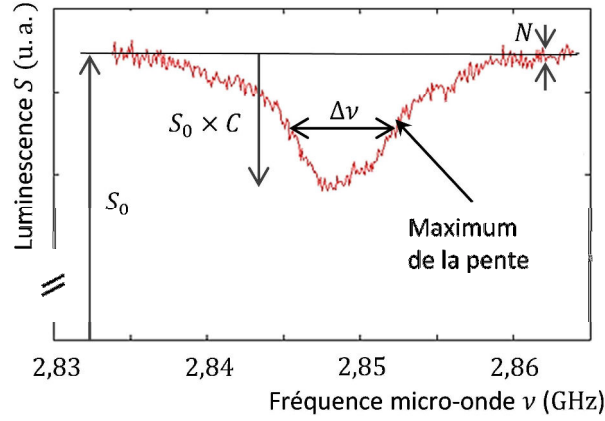


Figure III.7 : Définition des grandeurs liées à la sensibilité magnétique.

Spectre ODMR présentant un zoom sur une résonance magnétique. On représente sur cette courbe, la hauteur de la ligne de base S_0 , le contraste C , la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$ et le bruit N .

Tel que nous l'avons mentionné [Paragraphe II.4](#), le rapport signal à bruit du système est essentiellement lié au bruit de photons. Dans ce cas, le rapport S/N s'exprime ainsi :

$$\frac{S}{N} = \sqrt{L\Omega AT\zeta}, \quad (\text{III.35})$$

où :

- L est la luminescence de la source exprimée en nombre de photons par unité de temps, d'angle solide et de surface ;
- Ω son angle solide ;
- A la surface dont on collecte la photoluminescence ;
- ζ la transmission totale du système optique ;
- T le temps d'acquisition.

Il évolue comme la racine carrée de la quantité du signal reçue, donc comme la racine carrée du temps d'acquisition T et de la surface d'intégration sur le diamant A . De ce fait, la quantité $\eta = \delta B_{\min} \cdot \sqrt{T \cdot A}$ devient indépendante de T . On appelle sensibilité magnétique cette quantité :

$$\eta = p_f \cdot \frac{h}{g\mu_B} \cdot \frac{\Delta\nu}{C \cdot \sqrt{L\Omega\zeta}}. \quad (\text{III.36})$$

Nous donnons également cette expression où toutes les quantités sont directement accessibles de manière expérimentale :

$$\eta = p_f \cdot \frac{h}{g\mu_B} \cdot \frac{\Delta\nu}{C \cdot S/N} \cdot \sqrt{T \cdot A}. \quad (\text{III.37})$$

La sensibilité magnétique η est donnée en $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz} \cdot \mu\text{m}^2}$. Cela correspond au minimum de champ magnétique que l'on peut détecter en 1 s pour une surface d'intégration sur le diamant de $1 \mu\text{m}^2$.

Ce calcul est effectué en considérant le déplacement d'une résonance magnétique. La sensibilité obtenue correspond donc à une mesure de la projection du champ magnétique sur les axes cristallographiques (a) , (b) , (c) ou (d) . Nous cherchons maintenant à déterminer les sensibilités sur les axes (x) , (y) ou (z) du laboratoire.

Dans le cas où l'on dispose de quatre mesures indépendantes sur (a) , (b) , (c) et (d) , on a, selon les Équations (III.24) et (III.25) :

$$\Delta B_{x,y \text{ ou } z}^2 = \left(\frac{\sqrt{3}}{4}\right)^2 (\Delta B_a^2 + \Delta B_b^2 + \Delta B_c^2 + \Delta B_d^2). \quad (\text{III.38})$$

Si, par ailleurs, les incertitudes ΔB_i de ces mesures ont des valeurs identiques, on obtient :

$$\Delta B_{x,y \text{ ou } z} = \frac{\sqrt{3}}{2} \Delta B_i. \quad (\text{III.39})$$

Pour le calcul de la sensibilité, il nous faut également prendre en compte la durée de la mesure. Ici, les mesures (a) , (b) , (c) et (d) sont séquentielles. La durée totale de la mesure est donc multipliée par quatre. On obtient finalement :

$$\begin{aligned} \eta_{x,y \text{ ou } z} &= \sqrt{3} \eta \\ \eta_{x,y \text{ ou } z} &= 1,73 \eta. \end{aligned} \quad (\text{III.40})$$

Il y a donc une dégradation de la sensibilité par rapport à une composante (a) , (b) , (c) ou (d) , du fait de l'augmentation de la durée de la mesure. Cependant, ici, les trois composantes (x) , (y) et (z) du champ deviennent disponibles.

Dans le cas où seules trois mesures sont disponibles²⁷, (b) , (c) et (d) par exemple, on obtient le résultat suivant à partir de l'Équation (III.25) :

$$\begin{aligned} \eta_{x,y \text{ ou } z} &= \frac{3}{\sqrt{2}} \eta \\ \eta_{x,y \text{ ou } z} &= 2,12 \eta, \end{aligned} \quad (\text{III.41})$$

la durée de la mesure n'étant alors multipliée que par trois. On en conclut que la redondance introduite par la mesure de quatre composantes, au lieu de trois, améliore légèrement les résultats.

Dans la suite, nous ne nous intéressons qu'aux sensibilités sur les axes cristallographiques (a) , (b) , (c) et (d) . Les valeurs sur les axes (x) , (y) , et (z) s'obtiennent facilement à partir des Équations (III.40) et (III.41).

III.4.1.2 Évaluation de la sensibilité de notre expérience

Afin d'évaluer expérimentalement les performances de notre système, on place le diamant dans un champ magnétique uniforme créé par un aimant permanent, afin de différencier les résonances suivant les axes (a) , (b) , (c) et (d) . On acquiert ainsi une image de spectre de 32×32 pixels en réalisant une moyenne sur $N_{\text{Ramp}} = 64$ rampes

²⁷ C'est le cas lorsque le champ magnétique selon l'une des composantes est trop faible pour que la mesure soit pertinente, ou lorsque l'intervalle de fréquence de mesure est trop petit pour contenir toutes les composantes.

d'acquisition, et un échantillonnage $\nu_e = 0,3$ MHz. Les autres conditions expérimentales sont données dans le [Tableau III.1](#).

La [Figure III.8](#) présente le spectre ODMR prenant en compte le signal reçu sur l'ensemble des pixels de l'image. Les contrastes C et les largeurs à mi-hauteur $\Delta\nu$ des résonances magnétiques sont déterminés par un ajustement multi-lorentzienne ([cf. § III.2.1](#)). Les valeurs moyennes de ces paramètres sur les quatre classes de centres NV sont indiquées dans le [Tableau III.1](#). En revanche, la valeur du rapport S/N provient du signal reçu sur un seul pixel de 210 nm de côté ([cf. Chap. II § II.5](#)). Dans ces conditions expérimentales, l'optimum de sensibilité déduit de l'[Equation \(III.37\)](#) donne :

$$\eta_{a,b,c \text{ ou } d} = 2,0 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz} \cdot \mu\text{m}^{-2}}. \quad (\text{III.42})$$

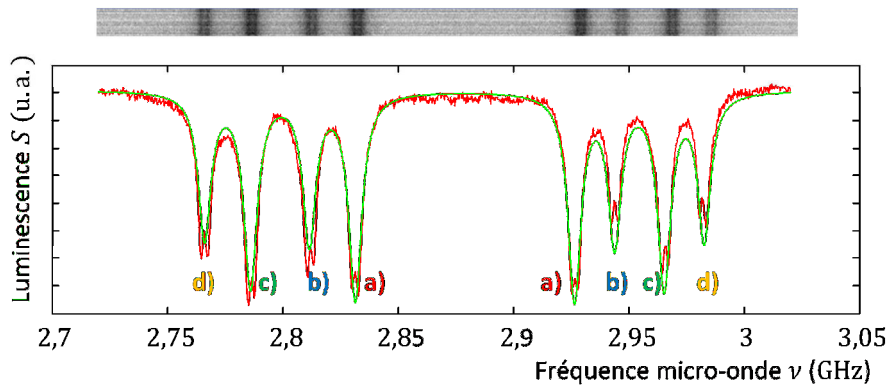


Figure III.8 : Spectre ODMR intégrant le signal reçu sur l'ensemble des pixels de l'image.

Les contrastes C , les largeurs à mi-hauteur $\Delta\nu$ et la ligne de base S_0 sont déterminés par l'ajustement d'une multi-lorentzienne. Les moyennes de ces paramètres sur les quatres classes (a), (b) (c) et (d) sont reportées dans le [Tableau III.1](#).

III.4.2 Performance de l'algorithme d'ajustement

Dans ce paragraphe, nous considérons l'acquisition complète d'une image de spectre ([cf. § III.1](#)) et évaluons expérimentalement les performances de l'algorithme d'extraction des données par ajustement de lorentziennes.

III.4.2.1 Sensibilité attendue

Sur un spectre ODMR, dont l'excursion en fréquence vaut ν_{Span} , l'information utile à la localisation d'une résonance est située autour de celle-ci, sur un intervalle de fréquence proche de la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$. Dans ce cas, seule une partie du spectre, proportionnelle à $\frac{2 \cdot \Delta\nu}{\nu_{Span}}$, est utile à la localisation des deux résonances magnétiques

d'une classe de centres NV. Le temps de mesure passé en dehors de ces résonances ne contient pas d'information. De cette manière, la quantité $\eta \cdot \sqrt{\frac{\nu_{Span}}{2\Delta\nu}}$ doit être une bonne approximation de l'optimum de sensibilité que l'on peut obtenir à partir de l'ajustement de multi-lorentziennes sur l'image de spectre.

Paramètres expérimentaux		
Diamant utilisé	Adv-sc-19	
Concentration surfacique en centres NV		$10^4 \text{ NV}/\mu\text{m}^2$
Puissance de pompe	P_{Ex}	150 mW
Puissance micro-onde	P_{MW}	25 dBm
Temps d'exposition	T	2,5 ms
Rapport signal à bruit	S/N	100 (<i>cf. Chap. II § II.5</i>)
Surface d'intégration	$\sqrt{A} = d_{pix}$	0,21 μm
Intervalle de fréquence du spectre ODMR	ν_{Span}	300 MHz
Largeur à mi-hauteur de la résonance	$\Delta\nu$	6,8 MHz
Contraste de la résonance	C	0,9 %
Sensibilités mesurées		
Sensibilité optimale	η	2,0 $\mu\text{T} \cdot \mu\text{m}/\sqrt{\text{Hz}}$
Sensibilité du <i>fit</i>	η_{fit}	9,6 $\mu\text{T} \cdot \mu\text{m}/\sqrt{\text{Hz}}$
Sensibilité des images différentielles	η_{diff}	2,0 $\mu\text{T} \cdot \mu\text{m}/\sqrt{\text{Hz}}$

Tableau III.1 : Paramètres relatifs à la sensibilité.

Avec les valeurs numériques de notre exemple : $\Delta\nu = 6,8 \text{ MHz}$ et $\nu_{Span} = 300 \text{ MHz}$, on obtient :

$$\eta \cdot \sqrt{\frac{\nu_{Span}}{2\Delta\nu}} = 9,4 \mu\text{T} \cdot \frac{\mu\text{m}}{\sqrt{\text{Hz}}} \quad (\text{III.43})$$

III.4.2.2 Vérification expérimentale

Afin d'évaluer expérimentalement les performances de l'algorithme d'ajustement de lorentziennes (*cf. § III.2*), un champ magnétique uniforme créé par un aimant permanent est mesuré deux fois, selon le protocole décrit [Paragraphe III.2](#). Les conditions expérimentales du [Tableau III.1](#) sont maintenues afin de permettre la comparaison des résultats. Les images de champs magnétiques de 32×32 pixels, notées *I* et *II*, sont soustraites l'une à l'autre pour effectuer des statistiques sur l'ensemble des pixels. La variance $(\delta B_{fit})^2$ est donnée par l'expression suivante :

$$(\delta B_{fit})^2 = \frac{1}{2} \cdot \langle (m^I - m^{II})^2 \rangle, \quad (\text{III.44})$$

où $\langle \rangle$ représente la moyenne sur l'ensemble des pixels et m^I ou m^{II} est la mesure du champ magnétique obtenu à partir de l'acquisition I ou II .

Nous répétons ce protocole en faisant varier la durée totale d'acquisition T_{Tot} de deux manières différentes :

- en augmentant l'échantillonnage N_{Ech} ,
- en augmentant le moyennage : $N_{Acq} \times N_{Ram}$ (cf. § III.1).

On trace alors la courbe $\delta B_{fit} \cdot \sqrt{A} = f(T_{Tot})$ sur la Figure III.9, pour des échantillonnages suffisamment resserrés : $\nu_e = \frac{\nu_{Span}}{N_{Ech}-1} < 2$ MHz, et pour des moyennages suffisamment élevés ($N_{Acq} \times N_{Ram} > 4$), de sorte que le *fit* fonctionne (cf. § III.1.3).

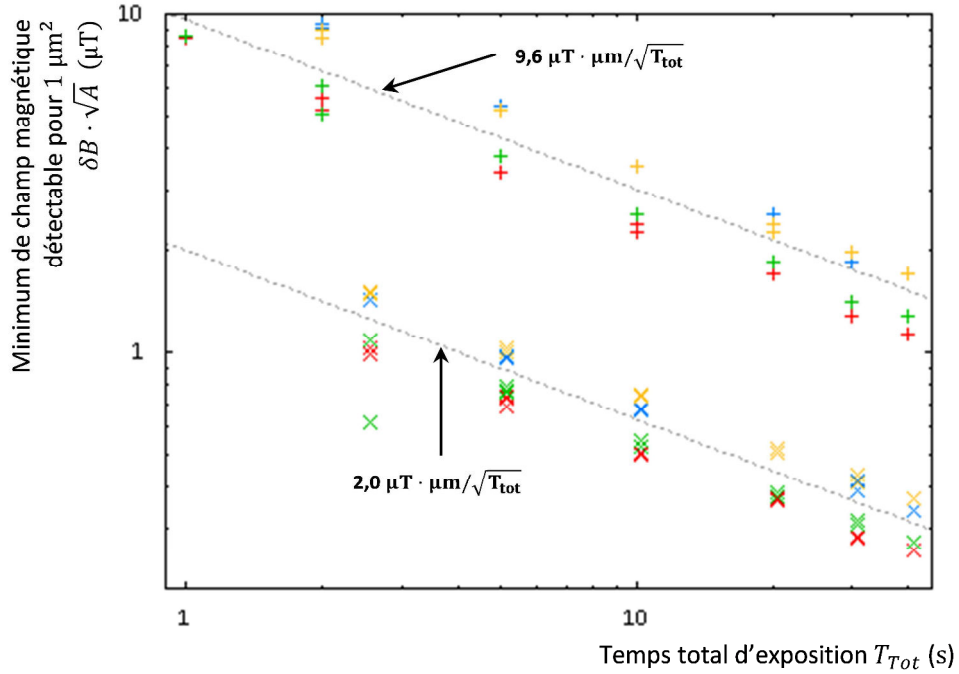


Figure III.9 : Mesure de la sensibilité : résultats expérimentaux.

On présente l'incertitude de la mesure de champ magnétique pour une surface sur le diamant de $1 \mu\text{m}^2$, en fonction du temps total d'intégration, par le protocole d'ajustement de lorentziennes (\times) et par la technique d'acquisitions différentielles ($+$), pour les quatre classes de centres NV — (a) en rouge, (b) en bleu, (c) en vert, et (d) en orange en fonction de la durée totale d'acquisition. Les pointillés représentent l'ajustement des données par une droite de pente $-1/2$ correspondant à l'origine poissonnienne du bruit de mesure. Ces droites permettent de définir une sensibilité par racine de hertz.

On constate tout d'abord que les deux manières d'augmenter la durée totale d'acquisition sont exactement équivalentes (les deux sont tracées Figure III.9 et demeurent indistinctes). Par ailleurs, l'évolution en $\sqrt{T_{Tot}}$, quelle que soit la manière

dont on fait varier la durée d'acquisition, nous permet de définir une sensibilité η_{Fit} en $\mu\text{T} \cdot \sqrt{\text{Hz} \cdot \mu\text{m}^{-2}}$, dont la valeur est très proche de celle attendue (cf. Éq. (III.43)) :

$$\begin{aligned}\eta_{Fit} &= \delta B_{fit} \cdot \sqrt{A \cdot T_{Tot}} \\ \eta_{Fit} &= 9,6 \mu\text{T} \cdot \mu\text{m}/\sqrt{\text{Hz}}.\end{aligned}\tag{III.45}$$

On en conclut que le *fit* extrait la quasi-totalité de l'information disponible dans le spectre ODMR. Dans la mesure où ce dernier utilise entièrement l'information sur les quatre directions (a), (b), (c), et (d), on peut considérer que cette méthode de mesure est proche de l'optimum en terme de sensibilité. Ceci d'autant que la durée de l'acquisition n'intervient que dans la racine carrée de la sensibilité.

Cependant, cette méthode nécessite l'acquisition d'un spectre complet dont l'acquisition ne peut être inférieure à $\min(T_{Tot}) = 600 \text{ ms}$ (cf. § III.2.1). Dans la suite, nous étudions un second protocole de mesure optimisant le temps d'intégration du signal de luminescence et permettant des mesures plus rapides.

III.4.3 Acquisitions différentielles

Afin d'obtenir l'optimum de sensibilité, toutes les acquisitions doivent être effectuées au maximum de la pente de la résonance. Considérons les signaux de luminescence aux fréquences $\nu^+ = \nu + \frac{\Delta\nu}{2}$ et à $\nu^- = \nu - \frac{\Delta\nu}{2}$. La différence $S(\nu^+) - S(\nu^-)$ est débarrassée du bruit de mode commun. Enfin, la normalisation par la somme $S(\nu^+) + S(\nu^-)$ permet de s'affranchir de la modulation par le profil de la pompe. On en déduit que la fonction $E(\nu)$, définie ci-dessous, s'apparente à une fonction d'erreur :

$$E(\nu) = \frac{S(\nu^+) - S(\nu^-)}{S(\nu^+) + S(\nu^-)}.\tag{III.46}$$

Cette fonction est tracée Figure III.10. On constate au voisinage de la résonance ν^R , c'est-à-dire sur environ 3 MHz correspondant à 0,1 mT, que $E(\nu)$ est effectivement proportionnelle à la différence $\nu - \nu^R$.

De cette manière, si on a une idée a priori de la position d'une résonance magnétique, on peut déterminer sa position plus précisément avec deux acquisitions de part et d'autre de cette résonance, à proximité des maxima de variation du signal S . La différence des deux images obtenues nous permet de remonter directement à la valeur du champ magnétique.

Comme pour l'acquisition d'une rampe de fréquences, on peut augmenter le rapport signal à bruit en moyennant plusieurs acquisitions pour chacune des images, à ν^+ et ν^- . La durée totale de l'acquisition des deux images est notée T_{Tot} . L'incertitude δB_{Diff} de ce protocole de mesure peut être déterminée expérimentalement de la même manière que précédemment : on compare les résultats obtenus par deux acquisitions différentielles indépendantes, dont on fait varier le temps d'intégration total T_{Tot} . On reporte $\delta B_{Diff} = f(T_{Tot})$ Figure III.9. On en déduit de même une sensibilité η_{Diff} :

$$\begin{aligned}\eta_{Diff} &= \delta B_{Diff} \cdot \sqrt{A \cdot T_{Tot}} \\ \eta_{Diff} &= 2,0 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz} \cdot \mu\text{m}^{-2}}.\end{aligned}\tag{III.47}$$

Cette valeur correspond exactement à la sensibilité magnétique optimale η de (cf. Éq. (III.45)).

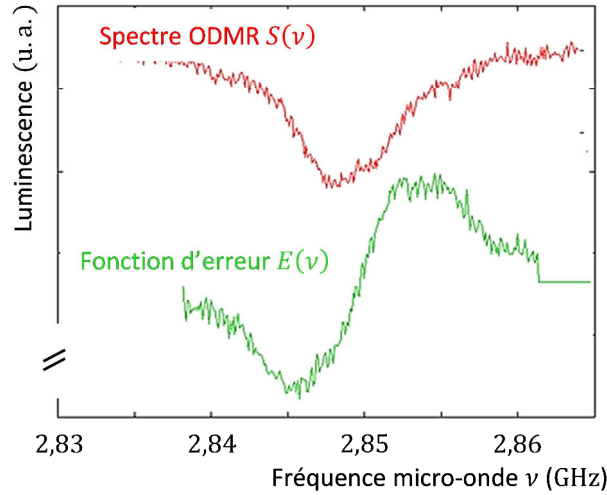


Figure III.10 : Fonction d'erreur.

La courbe du haut est un spectre ODMR $S(\nu)$ acquis sur un pixel de la caméra de notre montage, représentant une résonance magnétique typique.

La courbe du bas représente la fonction d'erreur $E(\nu)$ définie Équation (III.46).

Cette méthode présente notamment l'avantage de ne nécessiter qu'un minimum de deux expositions de la caméra et un traitement des données largement simplifié. Elle peut donc être répétée beaucoup plus rapidement. Dans le cas où l'on souhaite suivre en temps réel l'évolution d'un champ magnétique avec des constantes de temps courtes devant l'acquisition d'un spectre ODMR complet, mais plus longues que le temps d'exposition T de la caméra, il faudra choisir cette méthode. Cependant, elle requiert une connaissance à priori d'un champ magnétique. Il faut également que les variations spatiales et temporelles de ce dernier restent inférieures au dixième de millitesla afin que l'on ne sorte pas de la zone linéaire de la fonction d'erreur. Par ailleurs, le gain sur la sensibilité n'est que relatif, puisque la durée d'acquisition n'intervient que dans la racine carrée de la sensibilité. Ainsi, pour des mesures sans connaissance à priori du champ magnétique, où les contraintes temporelles sont moindres, la méthode du *fit* reste tout à fait indiquée.

III.4.4 Discussion sur les limitations de la sensibilité

III.4.4.1 Généralités

Dans ce paragraphe, nous étudions plus précisément les paramètres intervenant dans la sensibilité : les contrastes C et les largeurs à mi-hauteur $\Delta\nu$, en fonction des paramètres expérimentaux (la puissance de pompe P_{Pomp} et la puissance micro-onde P_{MW}). Pour ce faire, nous avons réalisé des spectres de luminescence en nous concentrant sur une raie en particulier, et en faisant varier tour à tour ces deux paramètres. La Figure III.11.a montre l'évolution de la résonance qui en résulte. On ajuste alors deux lorentziennes distantes de $\nu_{Hyp} = 3,1$ MHz (cf. Chap. I § I.5.3), qui permettent de mieux rendre compte de la présence de l'interaction hyperfine.

Si $\Delta\nu$ est la largeur à mi-hauteur de la raie ODMR et $\Delta\nu_{Lor}$ la largeur à mi-hauteur des lorentziennes, on a alors : $\Delta\nu = \Delta\nu_{Lor} + \nu_{Hyp}$ (cf. Chap. I § I.5.3).

On reporte Figure III.11.b l'évolution, en fonction de P_{Pomp} et de P_{MW} , de la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$, du contraste C de la résonance, ainsi que le rapport signal à bruit S/N de la mesure, déterminé Paragraphe II.5.2, et la sensibilité η , calculée Paragraphe III.4.2.

III.4.4.2 Effet de la puissance micro-onde

On constate que l'effet de la puissance micro-onde P_{MW} se ressent essentiellement sur le contraste de la raie. Comme nous l'avons vu, l'augmentation du champ micro-onde entraîne une augmentation du peuplement du niveau sombre $|m_s = \pm 1\rangle$ (cf. Chap. I § I.5). Ceci provoque une augmentation du contraste C . Cependant, on constate que l'on atteint rapidement un maximum, autour de $C = 1$ à 1,5 %, qui correspond à la saturation de la transition. En parallèle, on observe une légère augmentation de la largeur de la raie, due au phénomène d'élargissement inhomogène de puissance [37], mais celle-ci ne contrebalance pas l'amélioration du contraste.

En réalité, la largeur de la raie est essentiellement limitée par l'élargissement inhomogène dû à l'excitation optique et micro-onde continue des centres NV et à l'interaction hyperfine entre le spin électronique du centre NV et le spin nucléaire de l'atome d'azote (cf. Chap. I § I.5.3). En effet, on distingue cette interaction sur les spectres de la Figure III.11.a et sur la plupart des acquisitions que nous avons effectuées dans cette thèse, sans pour autant parvenir à la résoudre dans le cadre d'une excitation purement continue. La largeur de résonance magnétique est donc minorée par cette interaction hyperfine et ne varie que très peu autour de $\Delta\nu = 7$ MHz.

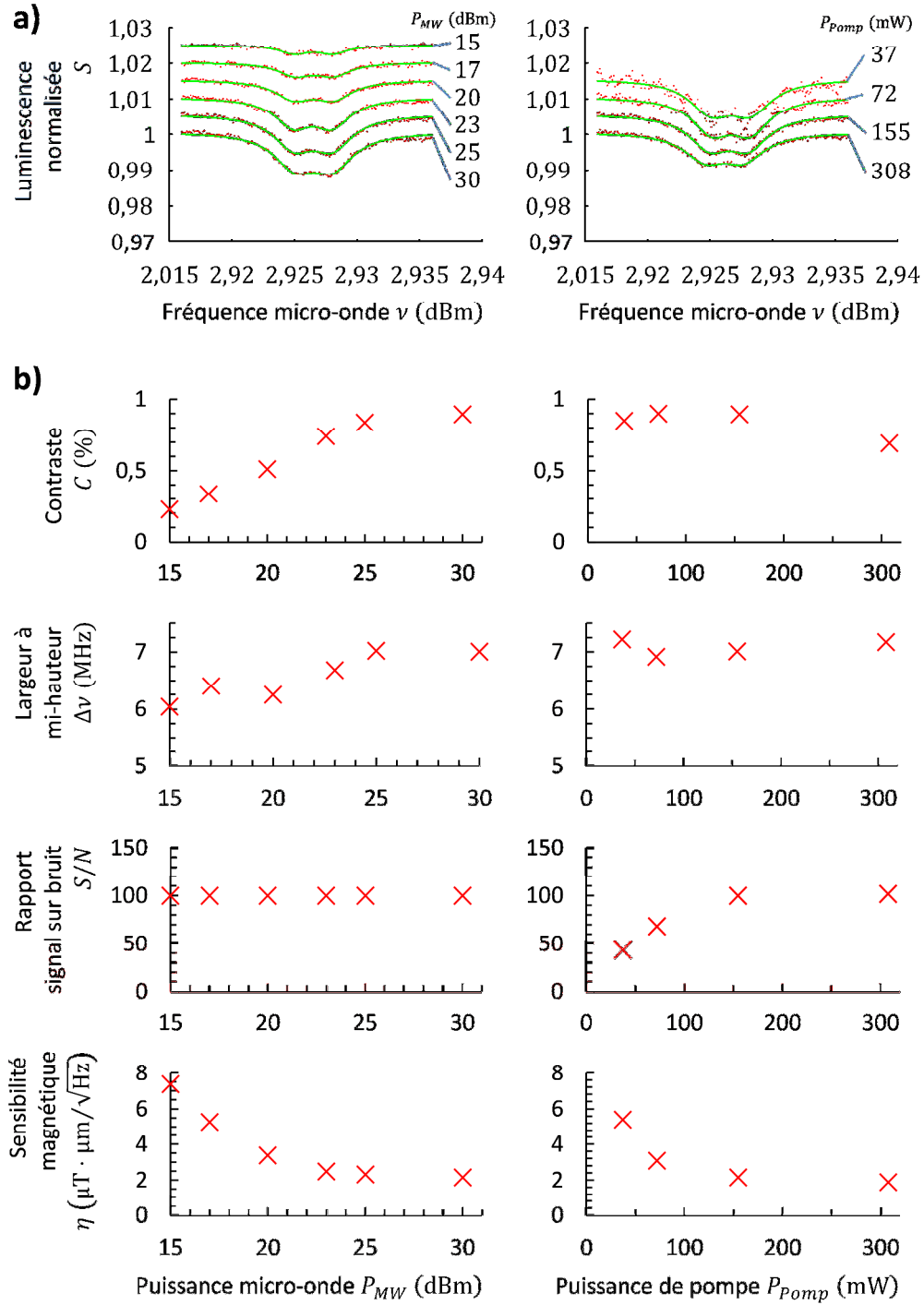


Figure III.11 : Évolution de la sensibilité magnétique avec les paramètres expérimentaux.

a) Zoom sur une raie ODMR en faisant varier la puissance micro-onde P_{MW} (à gauche) et la puissance de pompe P_{Pomp} (à droite). Les courbes sont artificiellement translatées verticalement afin de faciliter la lecture. L'ajustement de deux lorentziennes, distantes de $\nu_{Hyp} = 3,1$ MHz pour tenir compte de l'interaction hyperfine, permet de remonter au contraste C et à la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$ de la résonance.

b) Variation du contraste C , de la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu = \nu_{Hyp} + \Delta\nu_{Lor}$, du rapport signal à bruit S/N et de la sensibilité η calculée avec ces paramètres selon l'Équation (III.37), en fonction de la puissance micro-onde P_{MW} (à gauche) et de la puissance de pompe (à droite)

Finalement, l'optimum de sensibilité, autour de $2 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz} \cdot \mu\text{m}^{-2}}$, est obtenu à partir d'une puissance micro-onde voisine de 20 dBm.

III.4.4.3 Effet de la puissance de la pompe

L'effet de la puissance de la pompe n'affecte que très marginalement la largeur et le contraste de la résonance. Nous pouvons tout de même constater que la variation d'intensité de luminescence est proportionnelle à la puissance de pompe. Cela confirme que les intensités de pompes restent loin de l'intensité à saturation optique (*cf.* Chap. I § I.3.3). Afin d'atteindre cette dernière, il faudrait utiliser une puissance de pompe de plusieurs watts (*cf.* Chap. II § II.3.1).

Néanmoins, l'augmentation de la puissance de pompe se ressent directement dans la quantité de signal obtenue pour un temps d'exposition donné. Dans la mesure où l'on se trouve au bruit de photons (*cf.* Chap. II § II.5.2), la sensibilité est proportionnelle à l'inverse de la racine carrée de ce signal, et donc à l'inverse de la racine carrée de la puissance de pompe. Cependant, l'augmentation de la puissance de pompe finit par endommager la surface du diamant. Ce qui nous limite à une puissance de pompe voisine de 500 mW. Ceci détermine la limite à l'amélioration de la sensibilité par ce biais.

III.5 Perspectives, application à la micro-électronique

Nous présentons ici des résultats préliminaires d'une application originale de notre méthode à la caractérisation de circuits électroniques par la cartographie de courant.

Les circuits électroniques sont omniprésents dans nos environnements et la détection de défauts de fabrication en leur sein par une méthode rapide et utilisable en milieu industrielle, représente un enjeu majeur. Pour répondre à cette problématique, une solution consiste à inverser la loi de Biot et Savart pour calculer une distribution de courant à partir d'une cartographie de champ magnétique [66]. De cette manière, il est possible de déterminer le lieu de passage du courant électrique et repérer, par exemple, d'éventuels courts-circuits inopportuns. À l'heure actuelle l'obtention de telles cartographies de champ magnétique à l'aide de dispositifs tels que des micro-SQUID²⁸ est à l'étude [67].

Dans le cadre d'une collaboration avec le CEA LETI, nous présentons, Figure III.12 des résultats préliminaires de cartographie de densité de courant obtenus à partir des méthodes décrites dans ce mémoire. En particulier, nous étudions un circuit imprimé, fourni par le CEA LETI, présentant un conducteur en forme de méandre, représenté Figure III.12.a. Le diamant ADV-SC-19, présenté Chapitre II (§ II.1), y est déposé tel que présenté Figure III.12.b.

²⁸ Micro-SQUID : *micro-superconducting quantum interference device*.

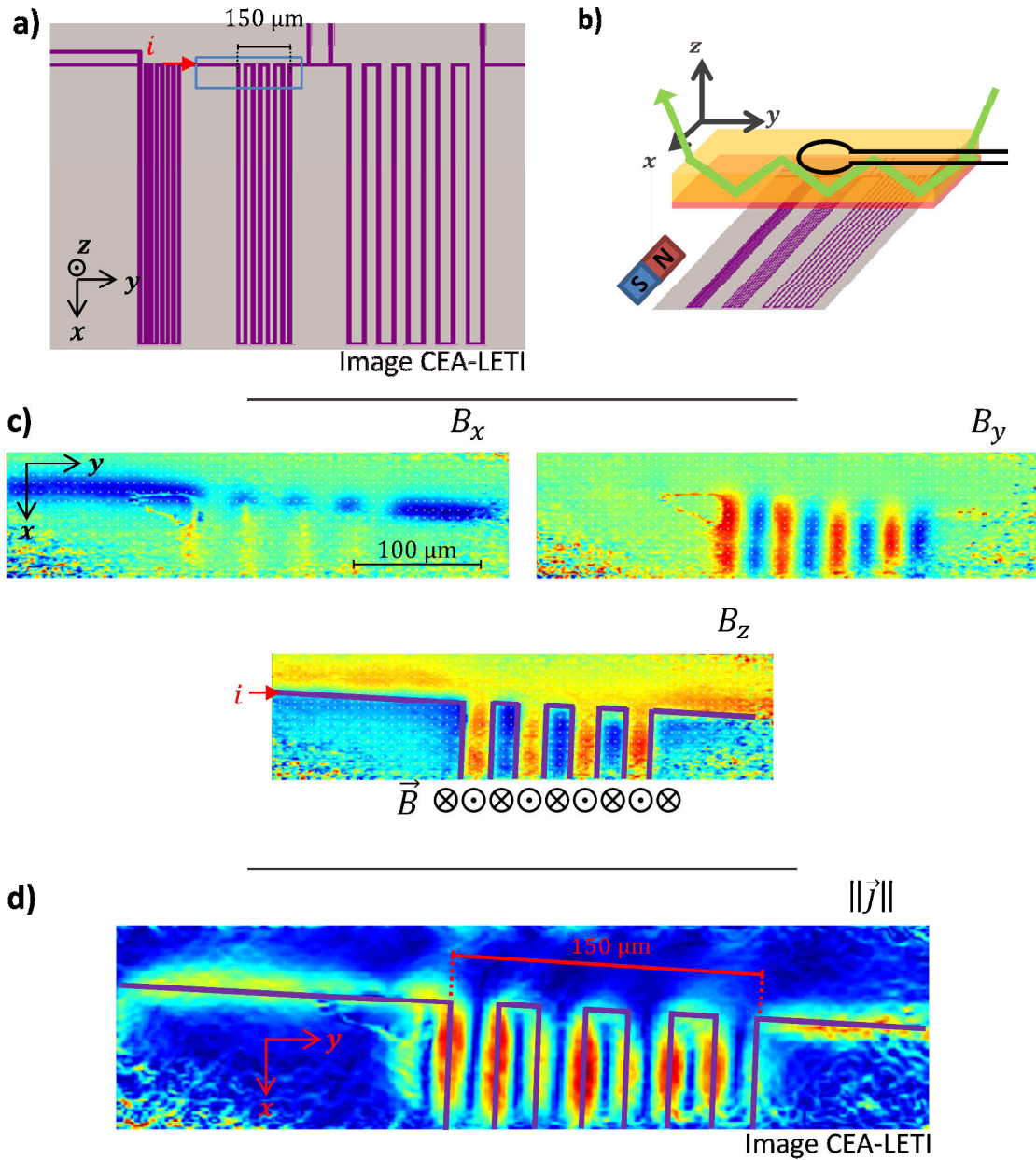


Figure III.12 : Cartographie de densité de courant.

a) Échantillon étudié, fourni par Antoine Nowodzinski du CEA LETI. Ce circuit imprimé possède des pistes électriques en forme de méandre (En violet). Le rectangle bleu précise la zone étudiée.

b) Configuration du dispositif expérimental. Le diamant ADV-SC-19 est posé sur le circuit imprimé de telle sorte que la couche de centres NV soit en regard de celui-ci. Les excitations, optique et micro-onde, sont telles que décrit précédemment (Chap. II).

c) Cartographie des trois composantes du champ magnétique dans le repère (x, y, z) obtenue avec notre dispositif, selon le protocole décrit dans ce chapitre (§ III.1, III.2 & III.3). La position du conducteur est représentée en violet.

d) Cartographie de la norme de la densité de courant \vec{j} obtenu, par le CEA LETI, à partir de ces mesures.

Selon le protocole décrit précédemment, le champ magnétique généré par le diamant est déterminé selon les trois directions d'espace dans la base (x, y, z) du laboratoire et présenté sur la [Figure III.12.c](#). Nous pouvons interpréter ces résultats en vérifiant que le champ magnétique circule effectivement autour du conducteur, étant dirigé alternativement selon z et $-z$ à mesure que l'on traverse les méandres de gauche à droite.

La [Figure III.12.d](#) présente une reconstruction de la cartographie de courant effectuée au CEA LETI à partir de ces données expérimentales. L'optimisation des méthodes d'acquisition et de reconstruction restent à faire afin d'éliminer les artefacts de mesure²⁹. Néanmoins, ces mesures permettent d'ores et déjà de rendre compte de la position effective du lieu du passage du courant.

Un premier avantage potentiel de cette méthode est la mesure simultanée des trois composantes d'espace du champ magnétique. Ceci doit permettre de cartographier les trois composantes d'espace de la densité de courant, et non seulement les composantes contenues dans le plan transverse (x, y) , rendant ainsi possible la détection et l'étude des jonctions électroniques entre les différentes couches d'un circuit imprimé, notamment par l'intermédiaire de vias.

Aussi, la simplicité du dispositif expérimental décrit dans ce mémoire pourrait être un avantage certain pour des applications en milieu industriel. Ces résultats préliminaires nous semblent très encourageants pour la poursuite de cette étude.

²⁹ Nous constatons par exemple que l'intensité totale du courant ne semble pas uniforme le long du conducteur.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons montré la possibilité d'obtenir une cartographie vectorielle de champ magnétique à l'échelle micrométrique, en utilisant la microscopie de photoluminescence d'une fine couche de centres NV. Nous avons également présenté des résultats préliminaires qui illustrent l'intérêt potentiel de l'utilisation de ces méthodes pour la caractérisation de circuits électroniques.

La résolution spatiale, donnée par la diffraction optique du microscope (*cf. Chap. II § II.2.2*), est d'environ 400 nm.

La sensibilité magnétique optimale, de $2 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz} \cdot \mu\text{m}^{-2}}$, est notamment déterminée par l'élargissement inhomogène de puissance des résonances magnétiques dû à une excitation purement continue des centres NV. Profitant mieux des propriétés de cohérence des centres NV du diamant, la mise en place de protocoles de mesures pulsées [13] devrait permettre une amélioration notable de la sensibilité [37]. Une autre solution consisterait à utiliser une couche de centres NV dont la concentration surfacique est plus dense, tout en évitant le phénomène de graphitisation (*cf. Chap. II § II.1.2.1*).

Pour cela, des techniques permettant l'augmentation du taux de conversion des atomes d'azote en centres NV, telles que le bombardement de protons, d'électrons ou d'atomes de carbone, l'implantation de plusieurs couches (éventuellement confondues) ou la fabrication des centres NV par la méthode du *delta-doping*, doivent être étudiées.

Chapitre IV

Analyse spectrale de signaux hyperfréquences

Dans ce chapitre, nous présentons une utilisation originale de la microscopie de photoluminescence d'une couche de centres NV pour l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences sur une large bande passante. Le principe de cette idée fait l'objet d'un brevet qui a été déposé en France par Thales, en octobre 2014 [68]

Après avoir discuté des enjeux d'une telle application (*cf.* § IV.1) et présenté plus en détail ses principes généraux (*cf.* § IV.2), nous détaillons la configuration de notre dispositif de microscopie de photoluminescence (*cf.* Chap. II) mis en œuvre pour valider expérimentalement cette méthode (*cf.* § IV.3). Puis, nous explicitons le fonctionnement du système sur un signal hyperfréquence particulier (*cf.* § IV.4) ainsi que son utilisation sur des signaux variables dans le temps (*cf.* § IV.5). Enfin, nous évaluons les performances obtenues et discutons des améliorations que l'on peut envisager pour un tel système (*cf.* § IV.6).

Contenu

IV.1	Enjeux.....	97
IV.2	Principe général de la mesure	98
IV.3	Configuration expérimentale	98
IV.3.1	Un gradient de champ magnétique.....	98
IV.3.2	Tolérance sur la position des centres NV	100
IV.3.3	Alignement du champ magnétique et de son gradient	100
IV.3.4	Pompage des centres NV.....	103
IV.4	Spectre d'un signal hyperfréquence modulé en amplitude	103
IV.4.1	Visualisation du gradient.....	104
IV.4.2	Synthèse d'un champ hyperfréquence modulé en amplitude.....	106
IV.4.3	Mesure du spectre	106
IV.5	Analyse de spectres en temps réel.....	107
IV.6	Performances du système	109
IV.6.1	Résolution, nombre de canaux	109
IV.6.2	Vitesse de rafraîchissement.....	110
IV.6.3	Sensibilité à l'amplitude du signal hyperfréquence	110
	Conclusion.....	112

IV.1 Enjeux

L'analyse de spectres consiste à analyser le contenu fréquentiel d'un signal temporel d'intérêt, c'est-à-dire à identifier les fréquences présentes dans ledit signal et à en donner éventuellement l'amplitude, ou même la phase. On s'intéresse ici à des signaux électriques dans le domaine des hyperfréquences au sens large, c'est-à-dire pour des fréquences pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines de gigahertz. L'analyse de ce type de signaux est d'un intérêt majeur dans le domaine des radars [69].

Les analyseurs de spectres commerciaux destinés à la caractérisation de signaux fonctionnent sur le principe de la démodulation : le signal d'entrée est mixé au signal monochromatique d'un oscillateur local. Après un filtrage passe-bas, on obtient les composantes présentes dans une bande étroite autour de cet oscillateur local. Il est ensuite nécessaire d'effectuer un balayage de cette fréquence pour obtenir l'intégralité des informations du signal d'entrée sur une large fenêtre spectrale [70].

Cette solution a pour principal inconvénient d'être intrinsèquement lente, à cause du balayage effectué. De plus, elle nécessite une électronique complexe, coûteuse et volumineuse. Enfin, dans le cas de signaux évoluant dans le temps, l'état de l'art ne permet pas de contrôler simultanément toute la fenêtre spectrale (sauf en employant un analyseur pour chaque bande). La probabilité d'interception des signaux, est au mieux, de quelques pourcents.

Pour des applications requérant une probabilité d'interception la plus proche possible de 100 %, tels que les systèmes d'écoute, une solution alternative consiste à numériser le signal d'entrée directement sur la plus grande bande passante possible, puis à effectuer des transformées de Fourier sur les échantillons obtenus [70]. Cette solution présente deux limites :

- les performances actuelles des convertisseurs analogique-numériques limitent la bande passante d'entrée à moins de 10 GHz, tout en présentant des dynamiques très insuffisantes au regard des besoins ;
- le débit de données à transmettre et à traiter est considérable, puisque l'on souhaite échantillonner des signaux dont la bande passante est élevée (quelques dizaines de gigahertz). Ceci aboutit à un volume, une consommation et un prix rédhibitoires pour un tel système.

Si les performances de calcul et de gestion des grands débits de données progressent très rapidement (loi de Moore), il n'en est pas de même pour celles des convertisseurs analogique-numériques très large bande, qui achoppent sur les limites fondamentales des composants électroniques.

L'idée que nous développons dans ce paragraphe, qui réutilise largement les notions développées dans les chapitres précédents, a comme principal avantage de fournir directement une « projection » du spectre complet du signal d'entrée sur une large bande, sans balayage ni numérisation ou calcul. De plus, sa simplicité amène à penser qu'elle serait beaucoup moins coûteuse et plus compacte.

IV.2 Principe général de la mesure

Nous avons démontré [Chapitre I](#) qu'un champ magnétique micro-onde peut induire des résonances magnétique dans les centres NV du diamant et nous avons vu que ces résonances peuvent être détectées de manière optique (*cf.* [Chap. I § I.5](#)). Par ailleurs, la position en fréquence de ces résonances est liée (de manière linéaire au premier ordre) au champ magnétique auquel est soumis le centre NV du fait de l'effet Zeeman (*cf.* [Chap. I § I.5](#)).

Dans le [Chapitre III](#), nous avons montré comment un champ micro-onde, de fréquence connue, peut être utilisé pour mesurer un champ magnétique, inconnu a priori. Ici, l'idée est d'inverser le processus : on utilise un champ magnétique connu, afin de mesurer une fréquence.

Si l'on applique un champ magnétique dont l'amplitude varie selon une direction donnée, les fréquences de résonances magnétiques seront fonction de la position dans cette direction. On obtient alors une relation directe entre la position dans le cristal et la fréquence de résonance. De ce fait, la position d'une résonance magnétique le long de ce gradient, détectée par une chute de la luminescence (*cf.* [Chap. I § I.5](#)), renseignera directement sur la fréquence de la radiation qui lui a donné lieu.

IV.3 Configuration expérimentale

IV.3.1 Un gradient de champ magnétique

Le domaine des atomes froids utilise communément des gradients de champ magnétique, dans le piège à atome de type magnéto-optique (MOT) par exemple.

Soit (X, Y, Z) ³⁰ une base orthonormée directe. La géométrie du gradient sera essentiellement planaire dans (X, Y) . Nous proposons ici une configuration associant quatre aimants permanents, qui s'inspire des pratiques dans ce domaine. Le champ magnétique ainsi rayonné possède un axe particulier, (X) dans notre cas, regroupant ces propriétés :

- la direction du champ magnétique est contenue dans (X) . En particulier, la direction du champ reste invariante le long de cet axe. Ceci nous permet de maintenir l'alignement des centres NV et du champ magnétique le long de cet axe (*cf.* [§ IV.3.3](#)) ;
- le champ magnétique varie de manière monotone le long de (X) ;
- le gradient de champ magnétique est également contenu dans (X) ;
- ces propriétés restent vérifiées sur une distance caractéristique comparable à la distance entre les aimants.

³⁰ La base (x, y, z) , en minuscule, sera associée au diamant. La position relative de ces deux bases sera discutée [Paragraphe IV.3.3 \(Fig. IV.3\)](#).

La Figure IV.1 décrit la configuration permettant de générer ce champ. Soient quatre aimants néodymes E1, E2, E3 et E4 de formes parallélépipèdes rectangles, ayant comme dimensions :

- longueur $L = 6 \text{ mm}$;
- largeur $l = 5 \text{ mm}$;
- épaisseur $e = 2 \text{ mm}$.

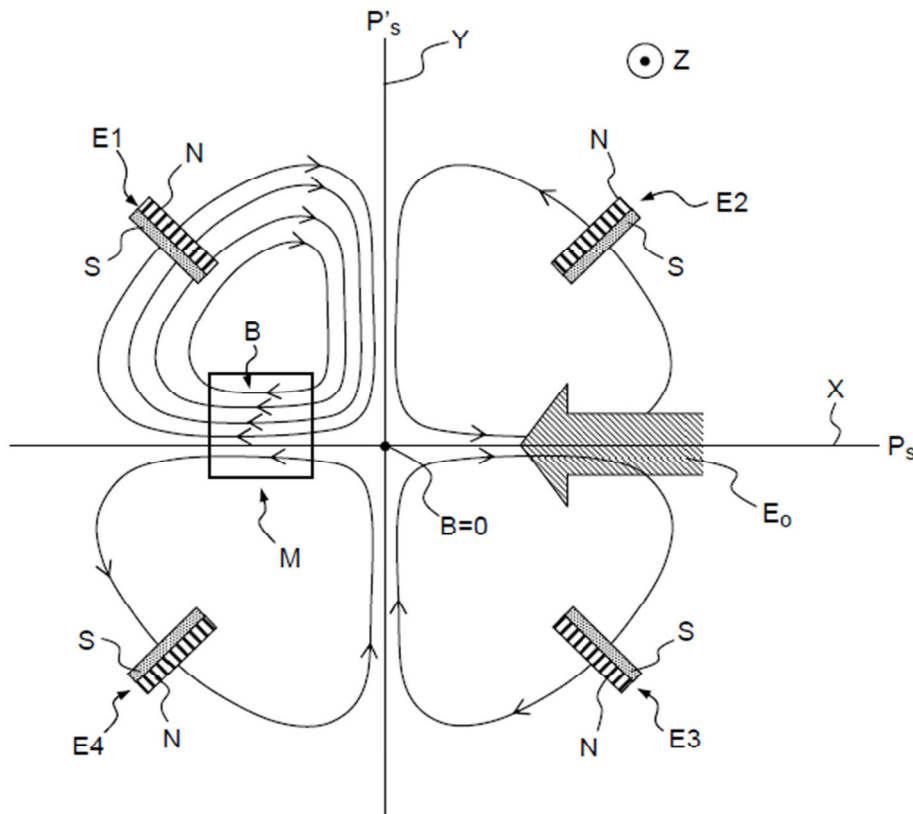


Figure IV.1 : Générateur de gradient de champ magnétique.

Les pôles sont situés sur leurs grandes faces. Chaque aimant génère un champ magnétique permanent, dont l'amplitude maximale, au contact de l'aimant, vaut environ 1 T. Nous disposons ces aimants aux quatre coins d'un carré d'environ 8 mm de côté, de sorte que leurs plus grandes dimensions soient selon la direction (Z) et que les faces principales soient à 45° des bords du carré.

De cette manière, (X, Y), positionné au milieu de la hauteur des aimants, est plan de symétrie. Le champ magnétique y sera donc contenu.

P_s et P'_s , perpendiculaires à (X, Y), sont également plans de symétrie. De cette manière, le champ est nul au centre ; il augmente à mesure que l'on s'en éloigne, et reste aligné selon la direction (X) au niveau du plan P_s . De ce fait, les directions du gradient de champ magnétique et du champ magnétique, lui-même, sont confondues.

Enfin, d'un aimant à l'autre, l'amplitude du champ varie de -1 T à 1 T . En disposant les aimants à une distance d'environ $d = 8\text{ mm}$, on aura un gradient de 250 mT/mm , correspondant à 7 GHz/mm . Cependant, le long de l'axe (X) décrit ci-dessus, le gradient sera plus faible.

IV.3.2 Tolérance sur la position des centres NV

Les aimants sont relativement éloignés les uns des autres ($d \approx 8\text{ mm}$). Par ailleurs, la hauteur – selon l'axe (Z) – du dispositif de gradient de champ est donnée par la longueur des aimants ($l = 6\text{ mm}$). Le champ magnétique sera donc invariant sur une largeur $e_y \ll d$ et une épaisseur $e_z \ll l$.

Dans le montage décrit dans ce paragraphe, l'extension de la zone comprenant les centres NV selon (Y) et (Z) est typiquement de quelques dizaines de microns³¹. On pourra donc négliger les variations du champ magnétique selon ces deux directions et ne considérer que celles selon (X).

IV.3.3 Alignement du champ magnétique et de son gradient

Soit un diamant de géométrie planaire auquel est associée une base orthonormée directe (x, y, z) telle que l'axe (z) soit normal à sa face principale³². Ce diamant sera placé dans le champ magnétique précédent. Du fait des invariances décrites ci-dessus, on peut choisir un diamant contenant, non plus une couche de centres NV de faible épaisseur comme [Chapitre III](#), mais une concentration volumique (*cf.* [Chap. II § II.1.1](#)). On considère un faisceau de pompage cylindrique, de diamètre micrométrique (*cf.* [§ IV.3.4](#)), dirigé selon (x). Si l'on peut se placer dans la configuration où les axes (x) et (X) sont confondus, le signal de luminescence ne doit dépendre que de la position le long de cet axe.

Par ailleurs, afin d'éviter le phénomène de perte du contraste des centres NV pour les forts champs magnétiques [36], nous souhaitons que l'une des quatre directions possibles des centres NV, par exemple (a), soit orientée selon (X) contenant le champ magnétique. De cette manière, le champ orthogonal reste faible et les propriétés remarquables des centres NV sont conservées [36]. Dans ce cas, le long de (a), l'effet Zeeman doit être linéaire sur une large bande de fréquence. En revanche, pour (b), (c) et (d), le champ magnétique est essentiellement perpendiculaire et l'effet Zeeman devient non linéaire à partir de quelques centaines de Gauss. Aussi, s'attend-on à une rapide chute du contraste des résonances correspondantes [36]. La [Figure IV.2](#) retranscrit

³¹ Les centres NV dont la photoluminescence participe à la mesure sont ceux qui sont excités par le faisceau de pompe aligné selon (X) et dont le diamètre est de quelques microns (*cf.* [§ IV.3.4](#)).

³² Attention, de la même manière qu'au [Chapitre III \(§ III.3\)](#), (x), (y) et (z) suivent les arêtes du diamant. Cependant, ici, le diamant n'est plus de type (100). Ces axes ne sont donc plus confondus avec les directions cristallographiques (100), (010) et (001).

l'allure attendue des positions en fréquence des résonances magnétiques des centres NV, dans le gradient de champ respectant un tel alignement.

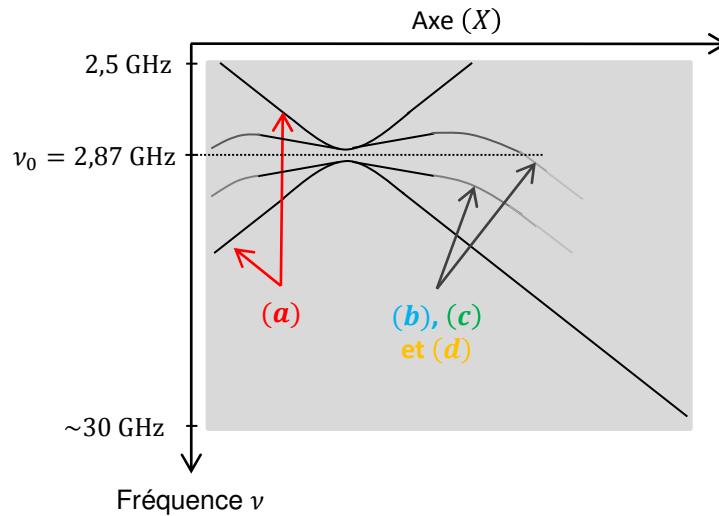


Figure IV.2 : Résonances magnétique dans un gradient de champ magnétique : cas optimal.

Représentation des résonances magnétiques (en noir) dans un gradient de champ magnétique selon (X) , pour lequel le champ magnétique reste aligné avec l'axe cristallographiques (a) du diamant. Cette figure est l'analogue théorique des images de spectres ODMR expérimentaux présentés Chapitre III Figure III.2. Une réalisation expérimentale d'une telle image de spectre d'un gradient de champ magnétique est présentée Paragraphe IV.4.1 Figure IV.5.b.

On peut également souhaiter que l'ensemble des centres NV soient dans cette direction, de sorte à n'avoir que deux résonances, aux fréquences ν_- et ν_+ . Ainsi, tous les centres NV contribuent en même temps à la détection de la résonance magnétique et améliorent le contraste d'un facteur quatre. Aussi, l'absence des résonances magnétiques associées à (b) , (c) et (d) réduirait les risques d'ambiguïtés par la multiplication des résonances magnétiques.

Dans le Chapitre II (§ II.1.3), nous discutons de la possibilité de faire croître des diamants dans les directions (113) ou (111) dans lesquelles des centres NV peuvent être incorporés selon un axe préférentiel. Pour les diamants de type (111) , les plus prometteurs, cette orientation est orthogonale à la face de croissance. L'obtention de tels diamants, dont la direction privilégiée des centres NV est le long de leur plus grande face, n'est pas immédiate³³. Il faut donc faire croître ces diamants dans la direction (111) en y incorporant des atomes d'azote sur plusieurs centaines de microns [55], puis les retailler de manière orthogonale à leur face de croissance. La Figure IV.3 (a & c) montre la direction des centres NV dans de tels diamants, ainsi que l'axe (X) contenant la

³³ La plus grande face du diamant correspond naturellement à la face de croissance.

direction du champ magnétique et de son gradient, confondu dans ce cas avec l'axe (x) appartenant à la surface du diamant.

Ne disposant pas de tels diamants, nous avons utilisé un diamant *Element Six* contenant naturellement environ 1 ppm d'impuretés d'azote (*cf. Chap. II § II.1.1*) et donc une concentration en centres NV inférieure à 10 ppb³⁴. La face principale est (100), tandis que les faces latérales sont (110). Les trois axes des centres NV sont représentés *Figure IV.3 (b & d)*, ainsi que l'axe (X) souhaité pour la direction du champ magnétique. Dans ce cas, il n'est pas confondu avec l'axe (x) appartenant à la surface du diamant.

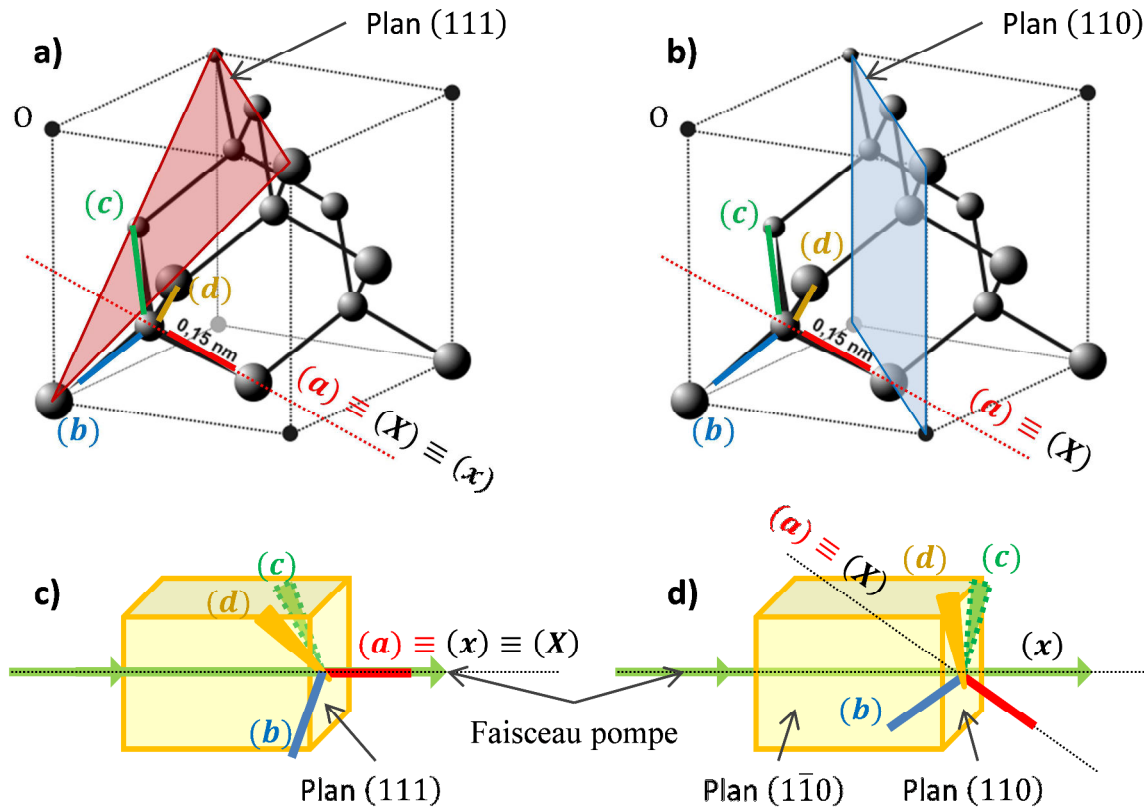


Figure IV.3 : Configurations optimales du gradient de champ magnétique et de l'axe des centres NV.

a) Représentation du plan (111), en rouge transparent, dans la maille cristalline du diamant. Les directions cristallographiques (a) = (111) en rouge ; (b) = ($\bar{1}\bar{1}1$) en bleu ; (c) = ($1\bar{1}\bar{1}$) en vert et (d) = ($\bar{1}1\bar{1}$) en jaune sont représentées. Les axes (100), (010) et (001) suivent les arêtes du cube. L'origine du repère O correspond au coin du cube en haut à gauche.

b) Représentation du plan (110) en bleu transparent.

c) Alignement du champ magnétique et de son gradient, selon (X) par rapport aux axes cristallographiques d'un diamant de type (111) et du faisceau de pompe (axe (x)).

d) Idem pour un diamant de type (110).

³⁴ On considère qu'en l'absence d'implantation, moins de 1 % des atomes d'azote sont convertis en centres NV.

IV.3.4 Pompage des centres NV

Le faisceau de pompe est le même que décrit [Chapitre II \(§ II.3.3\)](#). Son profil gaussien est caractérisé par son *waist* : $w_0 = 50 \mu\text{m}$ et par sa longueur de Rayleigh correspondante : $z_0 = 1,5 \text{ mm}$. De la même manière, ce faisceau pénètre dans le diamant par sa tranche. Mais dans la mesure où les centres NV sont répartis au sein du volume du diamant, l'utilisation des réflexions totales (*cf.* [Chap. II § II.3.3](#)) permettant d'éclairer spécifiquement cette surface devient inutile. Dans ce chapitre, le faisceau de pompe est orienté et centré sur l'axe (x) horizontal, afin de profiter au mieux du gradient de champ magnétique (*cf.* § IV.3.2 & [Fig. IV.3 \(c & d\)](#)).

IV.4 Spectre d'un signal hyperfréquence modulé en amplitude

Ici, nous montrons les résultats expérimentaux préliminaires validant le principe d'un tel analyseur de spectres.

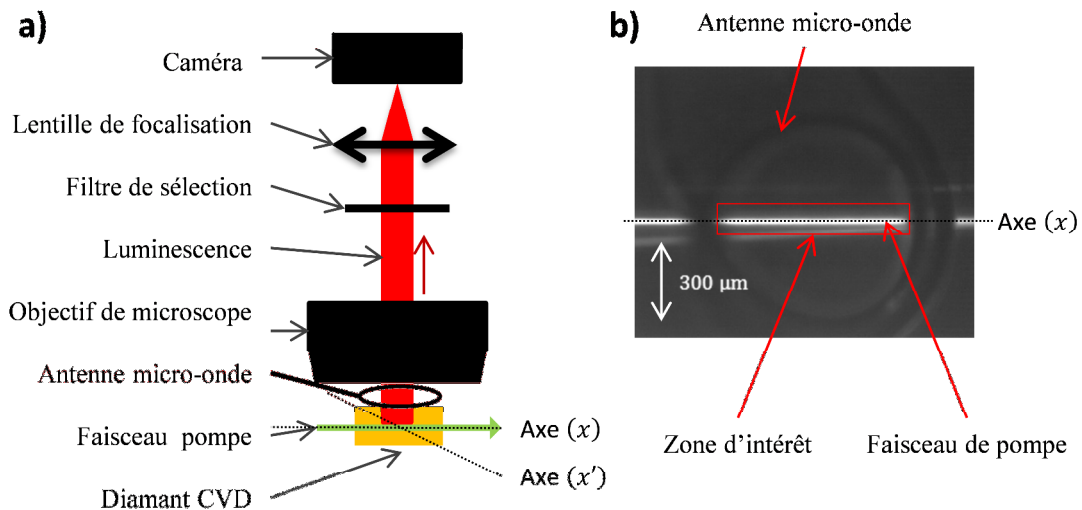


Figure IV.4 : Configuration expérimentale.

a) Montage optique. Le microscope décrit [Chapitre II \(§ II.2\)](#) produit l'image de la luminescence des centres NV du diamant sur la caméra ; on utilise ici un objectif X10 à air. Le faisceau de pompe a les mêmes caractéristiques que celui décrit [Chapitre II \(§ II.3\)](#). Seul son angle d'incidence est modifié, de sorte à supprimer les réflexions totales à l'intérieur du diamant.

b) Image de luminescence par le microscope. Le faisceau de pompe à l'intérieur du diamant ainsi qu'une réflexion sur la face de sortie sont visibles. L'antenne qui génère le champ micro-onde (*cf.* [Ann. II.4](#)) peut être distinguée.

IV.4.1 Visualisation du gradient

Nous plaçons le diamant dans le gradient de champ magnétique tel que présenté Figure IV.3.d. La Figure IV.4.a précise la configuration de notre dispositif de microscopie (cf. Chap. II § II.2) faisant l'image de luminescence du plan (x, y) du diamant sur la caméra d'acquisition. L'image obtenue est présentée Figure IV.4.b. La zone utile est encadrée en rouge. Cette zone utile est limitée en largeur par le diamètre du faisceau de pompe et en longueur par la taille de l'antenne micro-onde.

Nous visualisons le gradient de champ magnétique par l'acquisition d'une image de spectres, comme décrit Chapitre III (§ III.1) avec $\nu_{Min} = 1,88$ GHz, $\nu_{Max} = 3,12$ GHz. La Figure IV.5.b donne une représentation analogue à la Figure III.2 du paragraphe précité. On a :

- en abscisse, la direction spatiale (x) décrite ci-dessus ;
- en ordonnée, la valeur de la fréquence ;
- en niveau de gris, l'amplitude du signal de luminescence S , normalisée par sa valeur moyenne sur l'ensemble des fréquences.

Comme au Chapitre II, les résonances magnétiques apparaissent en noir sur la figure. Ici, le champ magnétique généré est plus important. Les résonances magnétiques sont donc davantage dispersées et dépassent la limite haute de 3,2 GHz imposée par le générateur hyperfréquence. De ce fait, seules six des huit résonances sont visibles. Par ailleurs, les positions des résonances varient fortement. Le gradient de champ magnétique remplit donc correctement son rôle. On attribue, en rouge sur la Figure IV.5.b, les résonances correspondantes à la direction cristallographique (a) , comme définie Figure IV.3.d. Ces résonances s'éloignent le plus de la position à champ nul $\nu_0 = 2,87$ GHz et semblent être le moins affectées par l'aspect non linéaire de l'effet Zeeman [36].

Dans le cas où le champ magnétique serait parfaitement aligné selon (a) , sa projection doit être identique sur (b) , (c) , et (d) et les résonances correspondantes doivent être confondues (cf. Fig. IV.2). Dans notre cas, les positions relatives des aimants avec le diamant et l'angle entre le plan (x, y) du diamant et le plan (X, Y) du générateur de champ magnétique ne sont pas parfaitement maîtrisées.

Cependant, en déplaçant la zone observée par le microscope, par exemple en se plaçant en haut à gauche de la Figure IV.5.b (en dehors de la figure), on peut trouver une aire où, pour une plage de fréquence, une unique résonance est présente. Ici, nous prenons $\nu_{Min} = 1,85$ GHz et $\nu_{Max} = 2,55$ GHz, soit $\nu_{Span} = \nu_{Max} - \nu_{Min} = 700$ MHz. Ceci nous permet d'avoir une bijection entre la position selon l'axe (x) et la fréquence de résonance. La Figure IV.5.c montre la représentation de l'acquisition de la rampe de fréquences pour cette plage de fréquences plus restreinte.

On peut alors utiliser l'algorithme d'ajustement de lorentzienne décrit Chapitre III (§ III.2) afin de déterminer, pour chaque pixel, la position en fréquence de la résonance. Dans le cas idéal, cette position ne doit dépendre que de la coordonnée (x) , mais dans notre cas, la direction du gradient n'est pas parfaitement alignée avec cet axe.

Il y a donc une légère dépendance avec l'axe (y) (cf. § IV.4.3). La Figure IV.5.d montre, en niveau de gris, la correspondance entre le pixel de coordonnées (x, y) et la fréquence ν à laquelle il entre en résonance.

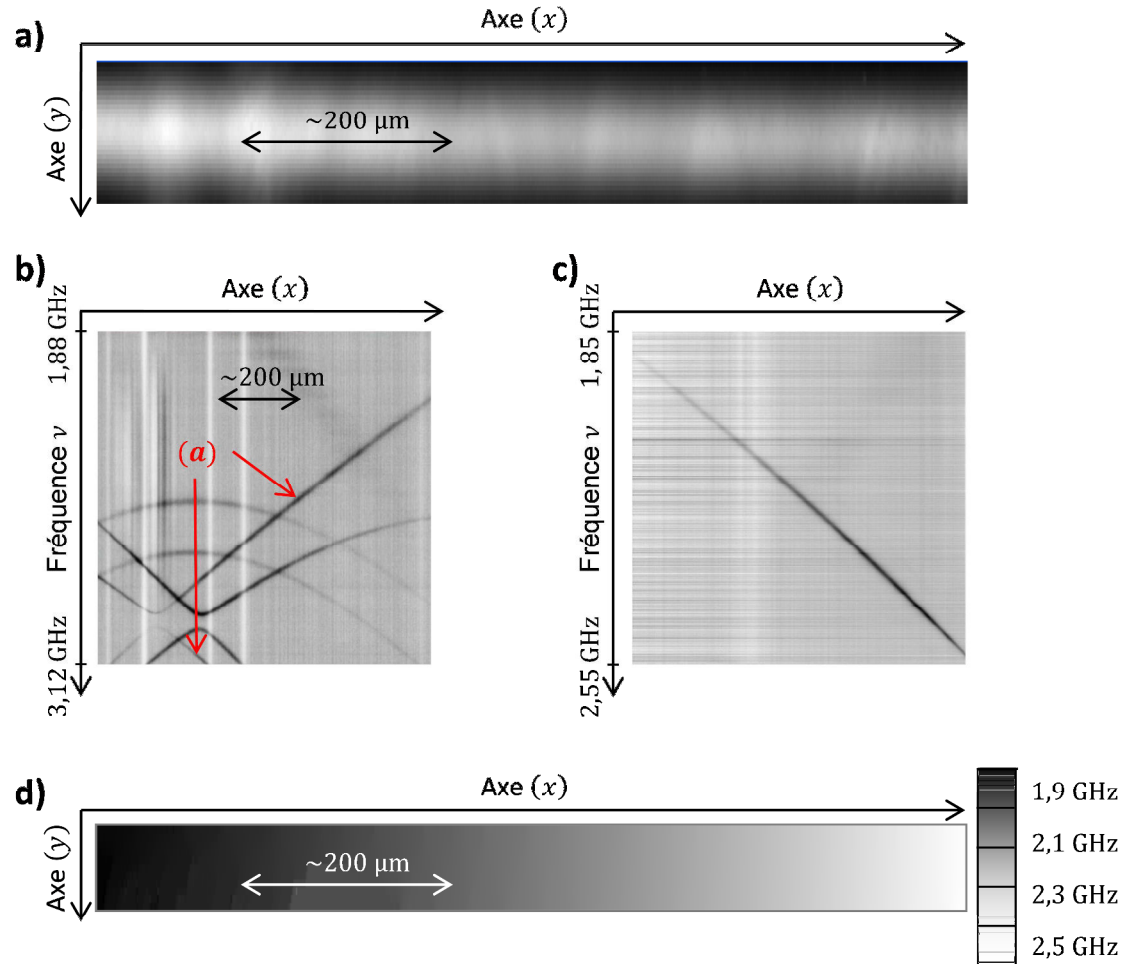


Figure IV.5 : Visualisation du gradient de champ magnétique.

a) Visualisation de la zone du diamant utilisée. Il s'agit de la sous-partie de la Figure IV.4.b encadrée par le rectangle rouge.

b) Représentation d'une image de spectre, comme décrit Chapitre III (§ III.1). La partie imagée est située au voisinage du centre, pour permettre la visualisation de l'annulation du champ magnétique. Ici, on ne se situe pas exactement au centre, puisque les quatre composantes ne s'annulent pas au même endroit.

c) Visualisation d'une zone, en haut à gauche de b), où il existe une bijection entre la fréquence de résonance et la position selon (x).

d) Représentation en niveau de gris de la valeur de la fréquence de résonance pour chaque pixel (x, y) . Cette variation est essentiellement selon (x). Ceci confirme le bon alignement entre cet axe et le gradient de champ magnétique.

IV.4.2 Synthèse d'un champ hyperfréquence modulé en amplitude

On souhaite tester le système sur un signal hyperfréquence comportant une modulation d'amplitude. La [Figure IV.6.a](#) décrit la synthèse de ce signal. Nous avons choisi d'utiliser le dispositif de conversion de fréquences ascendantes décrit ci-après.

Un mélangeur de fréquences hétérodynes reçoit sur son entrée LO (*Local Oscillator*) un signal hyperfréquence S_{HF} monochromatique, ici à $f_{HF} = 2,2$ GHz, et sur l'entrée IF (*Intermediate Frequency*) un signal radiofréquence S_{LF} , ici à $f_{LF} = 200$ MHz. Il génère, à sa sortie (*Radio Frequency*), un signal autour de f_{HF} , modulé en amplitude à la fréquence $f_{LF} = 200$ MHz.

Ce signal est visualisé sur un analyseur de spectre conventionnel et présenté [Figure IV.6.b](#). Les deux bandes latérales à 2 et 2,4 GHz ont une puissance d'environ 0 dBm. La porteuse à 2,2 GHz est à environ -10 dBm. Ce signal est alors envoyé directement sur l'antenne en court-circuit décrite [Chapitre II \(§ II.4\)](#).

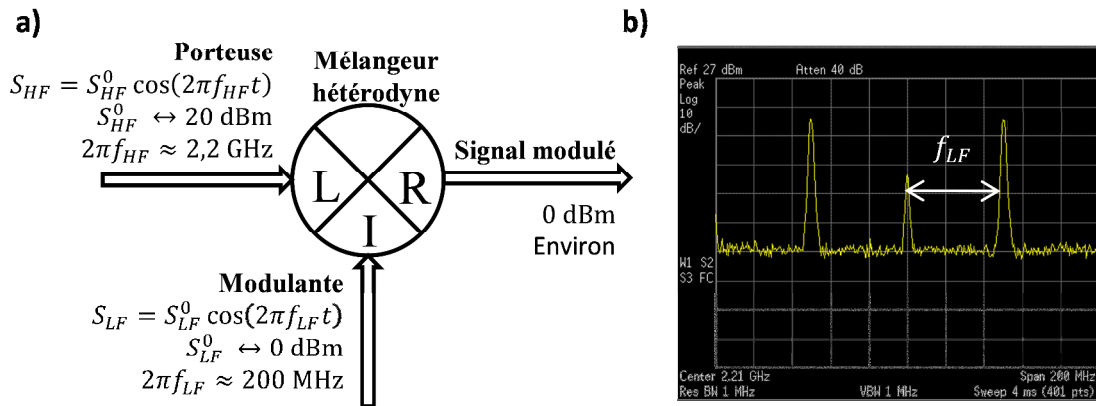


Figure IV.6 : Synthèse d'une modulation d'amplitude sur un signal hyperfréquence.

a) Montage électrique de la synthèse de la modulation d'amplitude.

b) Visualisation du signal modulé sur un analyseur de spectre conventionnel.

IV.4.3 Mesure du spectre

On acquiert alors une image $S(x, y)$ de la luminescence des centres NV soumis au champ hyperfréquence d'intérêt. Une acquisition $S_0(x, y)$ est également effectuée en l'absence de tout signal RF. Soit $C(x, y)$ la quantité telle que :

$$C(x, y) = \frac{S(x, y) - S_0(x, y)}{S_0(x, y)}. \quad (\text{IV.1})$$

Elle correspond au contraste décrit [Chapitre I \(§ I.5.2\)](#). Il rend compte alors de la présence d'une résonance magnétique et de son intensité. L'image $C(x, y)$ est présentée [Figure IV.7.a](#). On y distingue trois résonances magnétiques, correspondant aux trois composantes du signal hyperfréquence décrit ci-dessus. On confirme ainsi que le gradient de champ magnétique n'est pas strictement contenu dans (x) , ce qui se traduit

par le fait que les trois résonances, chacune à une fréquence donnée (2,0 ; 2,2 ; 2,4 GHz), ne sont pas parfaitement verticales.

On propose ici un protocole permettant de visualiser les données prises par l'ensemble des pixels de la caméra. À chaque pixel de la Figure IV.7.a correspond un point rouge de la Figure IV.7.b. En ordonnée, on a le contraste C donné par la Figure IV.7.a. L'abscisse correspond à la fréquence à laquelle ce pixel entre en résonance ; elle est donnée par la Figure IV.5.d. L'ensemble constitue le spectre du signal hyperfréquence, dont l'échantillonnage est réparti de manière aléatoire. La courbe verte présente un rééchantillonnage régulier à $\nu_e = 0,5$ MHz, prenant en compte toute l'information disponible.

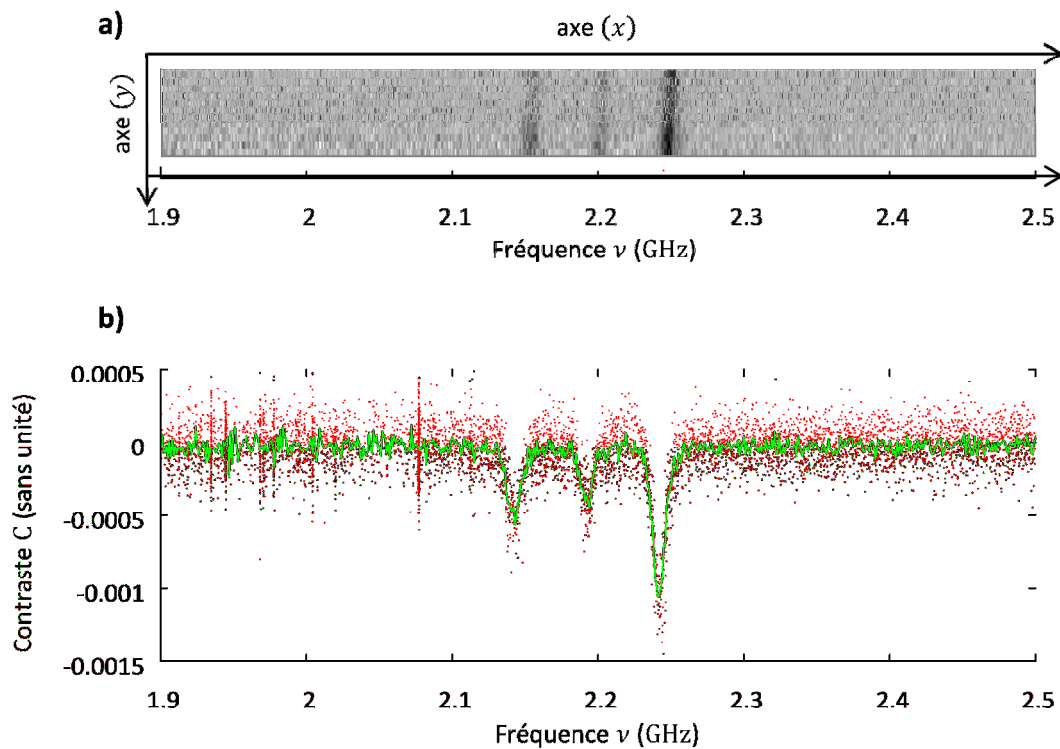


Figure IV.7 : Visualisation du signal modulé en amplitude.

a) Image présentant la baisse de luminescence relative $C(x, y)$.

b) Visualisation du spectre obtenu. Les points rouges correspondent aux données brutes (cf. texte). La courbe verte représente un rééchantillonnage régulier à $\nu_e = 5$ MHz.

IV.5 Analyse de spectres en temps réel

Nous pouvons maintenant présenter les résultats expérimentaux qui mettent en évidence l'intérêt d'un tel système pour l'analyse de spectres en temps réel.

On souhaite obtenir l'image du signal modulé décrit ci-dessus, tout en faisant varier dans le temps les fréquences f_{RF} et f_{MW} . On acquiert alors des images de photoluminescence en temps réel. Les variations dans le temps de l'intensité lumineuse

sur un pixel de coordonnées (x, y) sur l'image rendent compte, à un instant donné, de la présence de la fréquence correspondant à ce pixel. Si l'on considère que la dépendance du gradient selon (y) est faible, on peut sommer l'ensemble des y sur une seule ligne. Il nous faut alors normaliser chaque pixel de la ligne obtenue par la valeur de la luminescence hors résonance, afin de s'affranchir du profil de la pompe optique.

Dans notre cas, par souci de simplicité, nous avons réutilisé l'acquisition de type « image de spectre » décrite [Chapitre III \(§ III.1\)](#). La normalisation ne se fait pas par la valeur du pixel hors résonance, mais par sa valeur moyenne dans le temps.

La [Figure IV.8 \(a, b & c\)](#) présente de tels spectrogrammes, pour des fréquences instantanées variant dans le temps de différentes manières. La direction verticale n'est plus la fréquence, comme c'était le cas [Chapitre III](#), mais le temps. Chaque ligne est obtenue par la somme sur l'ensemble des y de l'image de luminescence, analogue à celle présentée [Figure IV.5.a](#). Puis chaque pixel est normalisé par sa valeur moyenne, comme décrit ci-dessus. Chaque ligne donne donc, en niveau de gris, le spectre instantané du signal hyperfréquence.

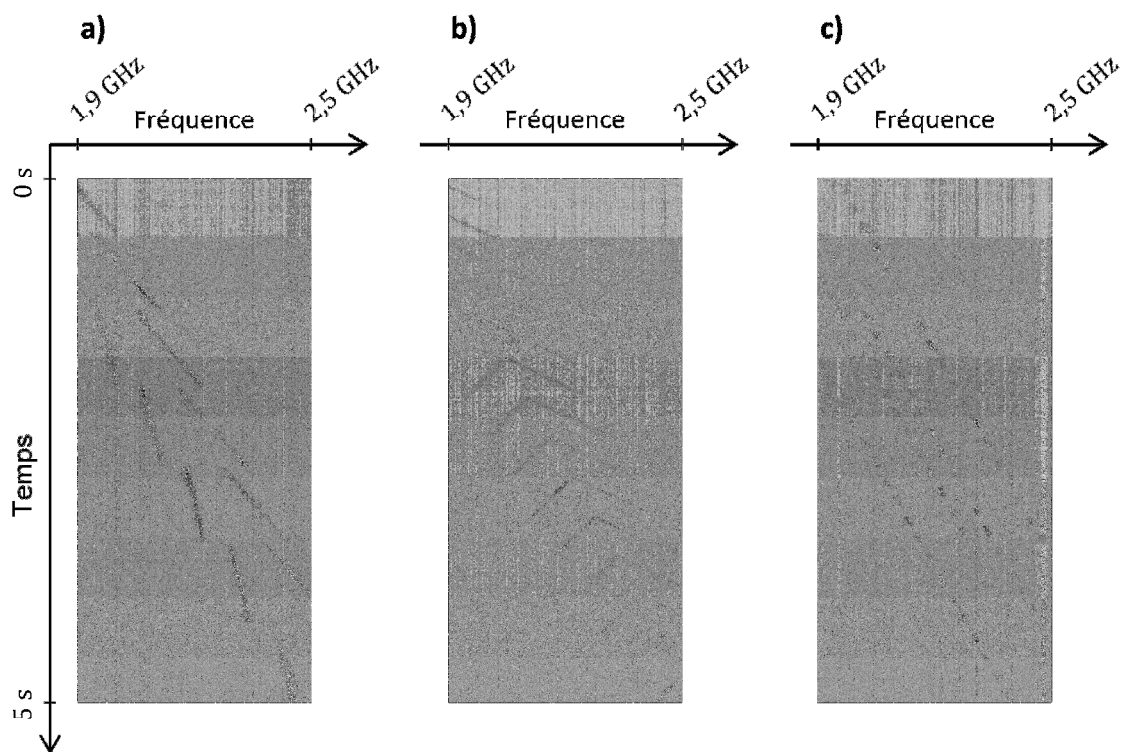


Figure IV.8 : Spectrogrammes de champs hyperfréquences variables dans le temps.

- a) La fréquence f_{HF} de la porteuse suit une rampe de fréquences linéaire, de 1,8 à 2,6 GHz en 5 s. La fréquence f_{LF} de la modulante varie en dent de scie, de 40 à 80 MHz sur une période d'environ 1 s.
- b) La fréquence de la modulante varie plus rapidement, de 0 à 100 MHz.
- c) La fréquence de la modulante présente des sauts entre 20 et 100 MHz.

Nous montrons de cette manière que le système peut rendre compte des fréquences instantanées présentes dans un signal hyperfréquence. Les performances en termes de vitesse de rafraîchissement sont données [Paragraphe IV.6](#).

On constate, en premier lieu, que la normalisation par la valeur moyenne dans le temps n'est pas optimale. En effet, dans le cas où l'on souhaite afficher le spectrogramme en temps réel, on ne connaît pas, a priori, cette valeur moyenne. Par ailleurs, elle dépend du temps total passé à résonance pour le pixel considéré : si au cours du temps, le pixel entre en résonance plusieurs fois, la valeur moyenne de sa luminescence en est diminuée : ceci conduit à une surestimation de son signal normalisé. En pratique, on distingue des variations d'intensités ayant une invariance verticale sur le spectrogramme, estompant certaines résonances et en accentuant d'autres. Cela induit une erreur sur la lecture de l'intensité du champ hyperfréquence à la fréquence considérée.

L'une des premières améliorations du dispositif d'acquisition serait de permettre l'acquisition d'une image de normalisation en l'absence du champ hyperfréquence, afin de remplacer la normalisation par la valeur moyenne temporelle. Le contraste $C(x, y)$, décrit [Équation \(IV.1\)](#), pourrait être directement mesuré et tracé.

Une seconde possibilité d'amélioration serait une calibration du système afin de garantir l'exactitude de la mesure en fréquence. En effet, sur la [Figure IV.5.d](#), on constate que la correspondance entre fréquence et position n'est pas parfaitement linéaire. On peut envisager d'étendre la méthode décrite [Paragraphe IV.4](#). Cependant, dans la mesure où un alignement du gradient avec la direction (x) est probable, une calibration plus simple reposant sur la [Figure IV.5.d](#), qui pour chaque x donne la fréquence ν (indépendant de y), devrait remplir parfaitement son rôle. On constate [Figure IV.5.d](#) que la position en fréquence de la résonance magnétique évolue de manière pratiquement linéaire avec la position, rendant possible cette calibration par une simple fonction affine.

IV.6 Performances du système

IV.6.1 Résolution, nombre de canaux

On a vu [Chapitre I \(§ I.5.2\)](#) que dans le cas d'une excitation purement continue, les largeurs à mi-hauteur des résonances magnétiques ne variaient que faiblement autour de $\Delta\nu = 7$ MHz. Ici, les isotopes d'azote sont dans les proportions naturelles, avec une majorité de ^{14}N (99,6 %). L'interaction hyperfine provoque une largeur de raie légèrement augmentée (*cf.* [Chap. I § I.5.3](#)). Dans notre cas, on a isolé une résonance entre $\nu_{Min} = 1,85$ et $\nu_{Max} = 2,55$ GHz ; ce qui correspond à un intervalle de fréquences disponibles $\nu_{Span} = 700$ MHz. Nous pouvons alors calculer le nombre de canaux de notre analyseur de spectre :

$$N_{Can} = \frac{\nu_{Span}}{\Delta\nu} \quad (IV.2)$$

$$N_{Can} \approx 100.$$

ν_{Span} , et donc N_{Can} , sont essentiellement limités par le diamètre de l'antenne micro-onde qui intercepte l'image de photoluminescence collectée par la caméra (*cf.* Fig. IV.4.b)

Dans le cas où les centres NV seraient parfaitement alignés avec le champ magnétique, tel que proposé Figure IV.3 (b & d), l'effet Zeeman doit rester linéaire et n'introduire aucune perte de contraste [36] sur une large plage de fréquences (*cf.* § IV.3.2). Dans ce cas, on s'attend à obtenir un gradient de champ magnétique tel celui présenté Figure IV.2. Il est alors probable que l'on puisse obtenir une résonance unique sur une plage de fréquences plus élevées. Par exemple, les aimants néodymes sont capables de générer des champs d'environ 1 T. Ceci conduirait à une plage de fréquences $\nu_{Min} = \nu_0 = 2,87 \text{ GHz} \rightarrow \nu_{Max} = 30 \text{ GHz}$. Avec une résolution $\Delta\nu = 7 \text{ MHz}$, cela donnerait un nombre de canaux supérieur à $N_{Can} > 4\,000$. Aussi, d'autres configurations peuvent être envisagées pour générer de tels champs magnétiques, utilisant par exemple des bobines de Helmholtz.

IV.6.2 Vitesse de rafraîchissement

Selon le protocole détaillé Paragraphe IV.5, chaque ligne des spectrogrammes tels que présentés Figure IV.8 correspond à une acquisition de la caméra. Ainsi le temps de rafraîchissement est intrinsèquement lié au temps d'exposition T . Pour les mesures présentées ici, avec une puissance de pompe $P_{Pomp} \approx 300 \text{ mW}$, ce temps vaut : $T = 4 \text{ ms}$.

Nous pouvons estimer que ce temps peut être largement raccourci par l'utilisation d'un diamant davantage dopé en centres NV. En effet, la concentration volumique en centres NV dans ce diamant est environ 10 000 fois plus faible que dans les échantillons implantés, puisque, avec une intensité de pompage identique, l'amplitude du signal de photoluminescence est comparable dans les deux cas (temps de pause identiques), alors que l'intensité du signal de photoluminescence est collectée sur une épaisseur d'environ 50 μm (*cf.* § IV.3.4), contre 5 nm dans le cadre de l'implantation (*cf.* Chap. II § II.1.2.4). L'utilisation d'échantillons plus riches en centres NV, associée à une caméra plus rapide, doit permettre la réduction de ce temps de pause à quelques microsecondes. En effet, la durée caractéristique de la photophysique du centre NV est limitée par le temps de vie de l'état métastable, environ 500 ns (*cf.* Ann. C). Dans un tel cas, le gain sur la vitesse de rafraîchissement atteindrait trois ordres de grandeurs.

IV.6.3 Sensibilité à l'amplitude du signal hyperfréquence

L'Annexe C (§ C.6) montre que le contraste des résonances magnétiques est proportionnel à l'amplitude du champ magnétique oscillant. Ceci permet des mesures

quantitatives, non plus seulement des fréquences présentes, mais également de leur amplitudes.

Avec notre système actuel, dont le diamant contient moins de 1 ppm d'atomes d'azote, pour un temps d'acquisition d'une seconde, nous sommes capables de détecter des signaux dont la puissance peut descendre jusqu'à -10 dBm. L'utilisation d'un échantillon de diamant plus fortement implanté doit permettre d'augmenter le rapport signal sur bruit de la mesure et de détecter des signaux de très faibles intensités.

L'antenne micro-onde, présentée [Chapitre II \(§ II.4\)](#) joue un rôle déterminant pour un analyseur de spectre fondé sur ce principe. En effet, elle permet de convertir un signal hyperfréquence électrique, se propageant par exemple dans un câble coaxial de 50 ohm, en un champ magnétique oscillant provoquant les résonances magnétiques des centres NV. En perspective, nous envisageons d'étudier plus en détail le fonctionnement de ces antennes afin d'en optimiser le fonctionnement. Ceci permettrait de vérifier l'expression du contraste donné [Annexe C \(§ C.6\)](#) pour un champ magnétique oscillant d'amplitude connue et d'étudier plus en détail la sensibilité des centres NV à une excitation hyperfréquence.

Néanmoins, nous proposons ici une limite théorique du plus petit champ magnétique oscillant détectable, indépendamment de l'efficacité de conversion de l'antenne considérée. En effet, le modèle de l'[Annexe C](#) ne prend pas en compte la relaxation du système en T_1 . Il s'agit du temps caractéristique de retour à l'équilibre thermodynamique des différents états du centres NV.

On peut considérer que le taux de transition W_{MW} pourra être détecté si son effet n'est pas contrebalancé par le retour à l'équilibre en $1/T_1$:

$$W_{MW} > \frac{1}{T_1}. \quad (\text{IV.3})$$

Nous rappelons l'expression du taux de transition W_{MW} donnée [Chapitre I \(Éq. \(I.11\)\)](#) :

$$W_{MW} = \frac{\Omega_R^2 \cdot T_2^*}{2} \quad \text{avec} \quad \Omega_R = \frac{g\mu_B}{\hbar} B_{MW}. \quad (\text{IV.4})$$

Finalement, le plus petit champ magnétique hyperfréquence détectable s'écrit :

$$B_{MW} > \sqrt{\frac{2}{T_1 T_2^*}} \times \frac{h}{g\mu_B}. \quad (\text{IV.5})$$

La référence [40] propose des diamants dont le temps de relaxation T_1 est proche de la centaine de secondes, et dont le temps de cohérence T_2^* vaut environ 500 μs . Dans ce cas idéal, on obtiendrait :

$$B_{MW} > 2 \cdot 10^{-10} \text{ T}. \quad (\text{IV.6})$$

La faiblesse de cette valeur s'explique par la grande pureté du diamant considéré et l'isolation presque totale des centres NV de leur environnement (*cf.* [Chap. I § I.1](#)), ceci menant à des temps de relaxation et des temps de cohérence élevés. Les centres NV peuvent donc interagir longtemps avec le champ hyperfréquence.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé une utilisation originale des centres NV, qui pourrait permettre une avancée importante dans le domaine de l'analyse de spectres de signaux hyperfréquences. En effet, nous montrons expérimentalement que cette méthode permet d'analyser, en temps réel, des signaux hyperfréquences sur une bande passante de 700 MHz, pour un temps d'acquisition totale de 4 ms. L'analyse simultanée de l'ensemble de ces fréquences pourrait répondre à une problématique majeure dans le domaine des radars. Aussi avons-nous évoqué des pistes d'amélioration pour notre système et proposé des valeurs théoriques encourageantes aux limitations éventuelles d'un analyseur de spectres de signaux hyperfréquences fondé sur ce principe : 4 000 canaux accessibles, rafraîchissement toutes les microseconde, sensibilité à l'amplitude du champ magnétique hyperfréquence de 0,2 nT.

Conclusions et Perspectives

Dans ce mémoire de thèse, nous avons montré que le centre NV du diamant est un capteur doté de caractéristiques remarquables. Ce défaut cristallin associe des propriétés optiques et magnétiques qui offrent la possibilité de détecter les résonances de son spin électronique par voie optique. Cette propriété permet, non seulement une mesure quantitative du champ magnétique auquel le centre NV est soumis, par la détection de la position en fréquence de ces mêmes résonances magnétiques, mais également la détection de la présence d'un signal hyperfréquence à l'une de ses fréquences de résonances, directement par la chute de sa photoluminescence.

Afin d'exploiter ces propriétés, nous avons conçu et réalisé un microscope de photoluminescence générant l'image d'une couche de centres NV sur une caméra d'acquisition. Ceci nous permet de détecter des résonances magnétiques par la chute du signal de photoluminescence du centre NV, avec une résolution spatiale limitée par la diffraction optique. Le dispositif obtenu fonctionne à la limite théorique du bruit de photons, avec des temps d'acquisition de l'ordre de la milliseconde.

La cartographie de champ magnétique à l'échelle micrométrique est la première utilisation de cette couche de centres NV développée dans ce mémoire. Nous avons montré qu'un tel système pouvait permettre d'obtenir, en quelques acquisitions de la caméra, une reconstruction vectorielle du champ magnétique sur une image complète. La sensibilité magnétique reportée est déterminée par la limite théorique du bruit de photons sur la caméra et par la largeur de résonances magnétiques, laquelle est intrinsèque à la méthode d'excitation utilisée pour les centres NV. Elle atteint environ $2\ \mu\text{T}$ pour un temps d'intégration de $1\ \text{s}$ et une surface de collection de la photoluminescence sur le diamant de $1\ \mu\text{m}^2$. Ces performances se situent dans l'état de l'art des systèmes de cartographie de champ magnétique utilisant ce principe. Nous estimons qu'elles pourraient être largement améliorées par le recours à des méthodes de mesures plus raffinées, ou par l'augmentation de la concentration de centres NV utilisée.

Grâce à une nouvelle collaboration avec le CEA LETI, notre dispositif de cartographie de champ magnétique est utilisé pour tester la possibilité de détecter des défauts dans les circuits imprimés. À l'heure actuelle, cette problématique industrielle requiert l'utilisation de dispositifs de magnétométrie complexes tels que les SQUID (*Superconductor Quantum Interference Device*). Des résultats préliminaires

encourageants concernant cette application ont été obtenus au cours de l'été et de l'automne 2014.

Nous avons également présenté une utilisation originale de ces ensembles de centres NV pour réaliser des spectres de signaux hyperfréquences de manière purement analogique, sur de larges bandes de fréquences. Expérimentalement, nous obtenons une résolution en fréquences de 7 MHz, associée à une plage de 700 MHz (correspondant à 100 canaux), pour une période de rafraîchissement de 4 ms. Ces performances semblent pouvoir répondre à des problématiques industrielles de détection radar, lorsque l'on souhaite surveiller simultanément, et en temps réel, une large bande de fréquences.

Nous montrons que ces résultats peuvent encore être améliorés, ouvrant la voie vers l'exploration d'une plage de fréquences de 30 GHz (correspondant à plus de 4 000 canaux). Ceci pourrait être obtenu dans le cas où la limite ne dépendrait que de l'amplitude maximale du champ que peut générer un aimant permanent (environ 1 T). Aussi, nous estimons que le temps de rafraîchissement pourrait être réduit à environ 1 μ s, dans le cas où la limite serait imposée par la photophysique spécifique du centre NV lui-même. De telles performances pourraient largement dépasser celles des analyseurs de spectres large bande conventionnels, basés sur l'échantillonnage et la transformation de Fourier du signal d'intérêt.

Les centres NV du diamant se comportent comme des « atomes artificiels » piégés dans une matrice solide. De plus, leurs propriétés fondamentales sont conservées à température ambiante. Cela confère une réelle simplicité au dispositif expérimental que nous avons étudié au cours de cette thèse. De cette manière, des applications industrielles, telles que l'analyse de spectre de signaux hyperfréquences ou la détection de défauts dans les circuits imprimés peuvent être envisagées. Par ailleurs, les pistes d'amélioration que nous avons proposées pourraient mener à des performances compatibles avec des applications scientifiques d'intérêt majeur, telles que la mesure directe du coefficient de diffusion des spins sur une feuille de graphène.

Annexes

Contenu

A.	Microscopie confocale.....	116
A.1	Volume d'excitation éclairé.....	117
A.2	Choix de la pupille intermédiaire	118
A.3	Résolution spatiale	118
B.	Interférométrie de Hanbury Brown et Twiss.....	120
B.1	Fonction d'autocorrélation en intensité $g^{(2)}$	120
B.2	Dispositif expérimental	120
B.3	Critère d'unicité	121
C.	Modélisation du centre NV.....	122
C.1	Modèle général.....	122
C.2	Résolution d'un modèle simplifié.....	124
C.3	Calcul de la polarisation du système	126
C.4	Polarisation en l'absence de micro-onde.....	128
C.5	Cas de la magnétométrie.....	129
C.6	Cas de l'analyse de spectres	130
C.7	Transition à 1 042 nm	131

A. Microscopie confocale

Nous présentons ici le montage de microscopie confocale [71] que nous avons réalisé pour l'étude de la physique des centres NV uniques (cf. Chap. I § I.3), et pour la caractérisation de nos échantillons de diamants contenant des ensembles de centres NV (cf. Chap. II § II.1). La Figure A.1.a montre le montage optique du dispositif. L'excitation optique des centres NV est obtenue par un faisceau de pompe à la longueur d'onde $\lambda_p = 532$ nm. La luminescence de l'échantillon, due aux centres NV dans notre cas, est collectée par l'objectif de microscope puis transmise par une lame dichroïque, laquelle permet de séparer le signal de pompe de la luminescence des centres NV. Une pupille, dite « confocale », sélectionne le signal lumineux utile pour améliorer le rapport signal à bruit de la mesure. Par ailleurs, un filtre, qui ne laisse passer que les longueurs d'onde supérieures à 585 nm, réduit la plage du spectre lumineux à la seule bande d'émission du centre NV (cf. Chap. I § I.3). Finalement, le signal transmis est envoyé sur une photodiode à avalanche en mode de comptage de photons. Elle mesure l'intensité du signal de luminescence transmis.

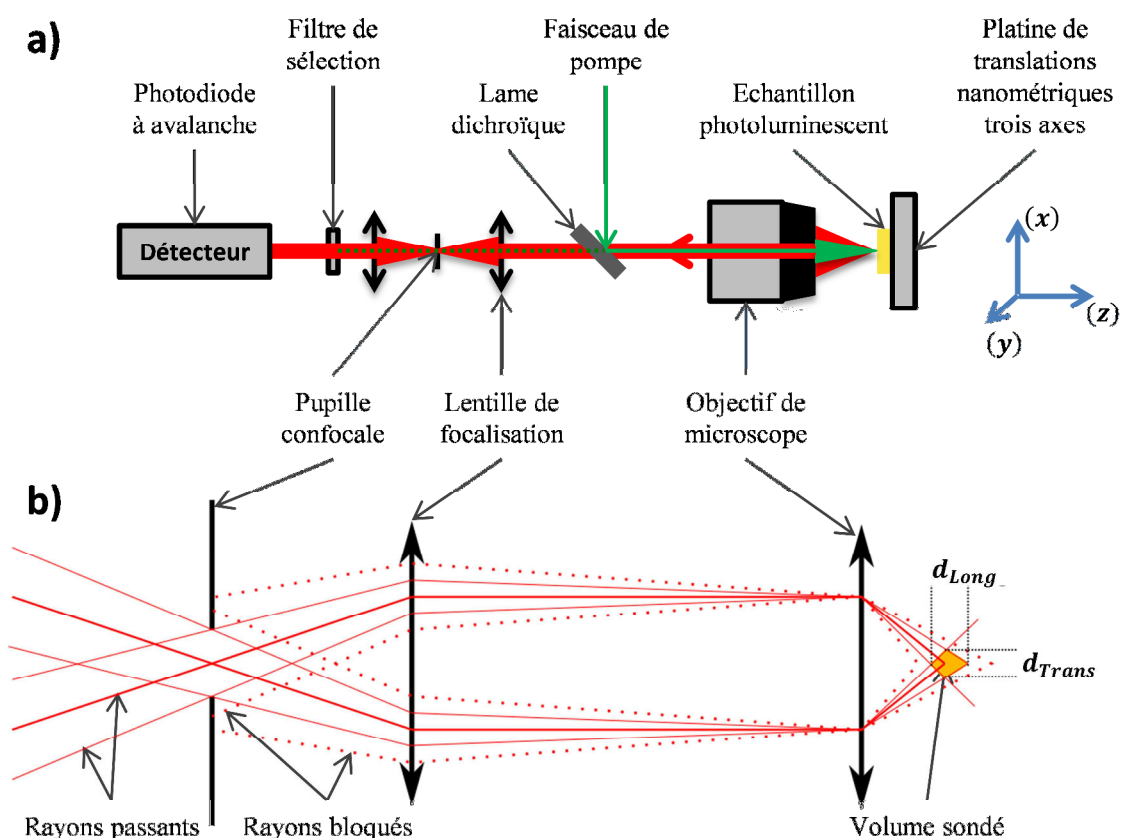


Figure A.1 : Montage de microscopie confocale.

a) Éléments optiques. b) Trajectoire des rayons lumineux, sélection du volume sondé.

A.1 Volume d'excitation éclairé

Le faisceau de pompe est focalisé sur l'échantillon par l'objectif de microscope. Un système afocal composé de deux lentilles permet de faire coïncider exactement le diamètre ($2w_1$) du faisceau d'excitation³⁵ avec le diamètre (ϕ_{obj}) de la pupille de l'objectif de microscope. De cette manière, le diamètre de la tache d'Airy sur le plan focal objet du microscope vaut :

$$2w_0 = 0,81 \cdot \frac{\lambda_p}{ON_{obj}}. \quad (\text{A.1})$$

Le facteur 0,81 provient du fait que l'on considère un dispositif de microscopie confocale, dont la résolution est légèrement améliorée par rapport à celle du microscope classique. La longueur de Rayleigh associée correspondante vaut :

$$z_0 = \pi \cdot \frac{w_0^2}{\lambda_p}. \quad (\text{A.2})$$

Les dimensions de la tache de diffraction ne sont que peu modifiées par le passage dans le diamant. En effet, selon les lois de la réfraction de Snell-Descartes, l'ouverture numérique est inchangée par le changement d'indice. Par ailleurs, l'aberration sphérique, introduite par l'interface plane, peut être négligée, dans la mesure où l'on considère des centres NV très proches de la surface.

Ici, nous utilisons un objectif à immersion X60 à forte ouverture numérique. Il s'agit de celui décrit [Chapitre II \(§ II.2\)](#), également utilisé pour le dispositif d'imagerie magnétique. Les grandeurs relatives à cet objectif sont rappelées [Tableau A.1](#). Ces grandeurs, w_0 et z_0 , diffèrent de ϕ_0 et d_0 décrites [Chapitre II \(§ II.2\)](#) du fait que l'on considère ici un dispositif de microscopie confocale.

Objectifs à immersion			
Grossissement commercial	G_{obj}		60
Ouverture numérique	ON_{obj}		1,35
Indice d'immersion	n_{obj}		1,48
Distance de travail totale	Wd_{obj}	(μm)	320
Tache de diffraction à $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$			
Diamètre	$2w_0$	(nm)	321
Profondeur de champ	z_0	(nm)	151

Tableau A.1 : Grandeurs relatives aux objectifs de microscopes.

³⁵ Le faisceau d'excitation est de type gaussien. Son diamètre est pris à $1/e^2$ de la valeur au sommet.

A.2 Choix de la pupille intermédiaire

La pupille intermédiaire est conjuguée avec le foyer du microscope par l'intermédiaire d'une lentille, de sorte que le faisceau soit collimaté entre ces deux optiques³⁶. La [Figure A.1.b](#) présente le trajet des rayons lumineux et montre comment la pupille limite la transmission de la photoluminescence à un petit volume, dit « volume sondé ». De cette manière, seul le signal provenant de zone d'intérêt est détecté, limitant ainsi le bruit de fond.

Nous souhaitons que la quasi-totalité du signal provenant du foyer de l'objectif soit transmise. Le diamètre de la pupille ϕ_{Pup} doit donc être juste supérieur à la taille de la tache de diffraction d'un point source au foyer objet de l'objectif, sur le plan image de la lentille :

$$\phi_{Pup} \geq 2 \cdot 1,22 \frac{\lambda_{Lum}}{\phi_{Obj}} \cdot f'_L \quad (\text{A.3})$$

$$\phi_{Pup} \geq \begin{cases} 72 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour l'objectif à air} \\ 30 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour l'objectif à immersion,} \end{cases}$$

où l'on prend $\lambda_{Lum} = 700 \text{ nm}$, la longueur d'onde de la luminescence observée, et $f'_L = 100 \text{ mm}$, la focale de la lentille. On dispose d'une pupille de diamètre $\phi_{Pup} = 50 \text{ } \mu\text{m}$ bien adaptée à l'objectif à immersion. Un raisonnement d'optique géométrique (*cf.* [Fig. A.1.b](#)) permet de calculer les dimensions du volume sondé.

La dimension transversale d_{Trans} vaut :

$$d_{Trans} = \phi_{Pup} \cdot \frac{f'_{Obj}}{f'_L} \quad (\text{A.4})$$

$$d_{Trans} = \begin{cases} 1,3 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour l'objectif à air} \\ 2,0 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour l'objectif à immersion.} \end{cases}$$

La dimension longitudinale d_{Long} vaut :

$$d_{Long} = 2 \cdot \frac{f'_{Obj}{}^2}{f'_L} \cdot \frac{\phi_{Pup}}{\phi_{Obj}} \quad (\text{A.5})$$

$$d_{Long} = \begin{cases} 1,3 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour l'objectif à air} \\ 1,5 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour l'objectif à immersion.} \end{cases}$$

A.3 Résolution spatiale

Une platine de translation permet des déplacements de l'échantillon étudié sur des distances nanométriques, très petites devant les résolutions optiques. Un balayage en (x, y) donne une image détaillée de la photoluminescence de l'échantillon. En effet, lorsqu'un fluorophore arrive dans le spot d'excitation décrit [Paragraphe A.1](#), il émet de la luminescence, laquelle est alors captée par l'objectif de microscope puis transmise au

³⁶ L'objectif de microscope est corrigé à l'infini.

détecteur par la pupille confocale et par le filtre de sélection. La tache focale du spot d'excitation étant plus petite que le volume sondé, l'image d'une source ponctuelle de photoluminescence donnera exactement l'image spot d'excitation décrite [Paragraphe A.1](#). Les dimensions du volume sondé n'affectent donc pas la résolution spatiale du microscope, mais uniquement le rapport signal à bruit de la mesure, en ne sélectionnant que le signal d'intérêt. La [Figure A.2](#) présente l'image d'un centre NV unique au sein d'un diamant massif. Cela nous permet de vérifier expérimentalement les grandeurs données [Tableau A.1](#). L'unicité du centre NV observé est assurée par le montage de Hanbury Brown et Twiss, décrit [Annexe B](#).

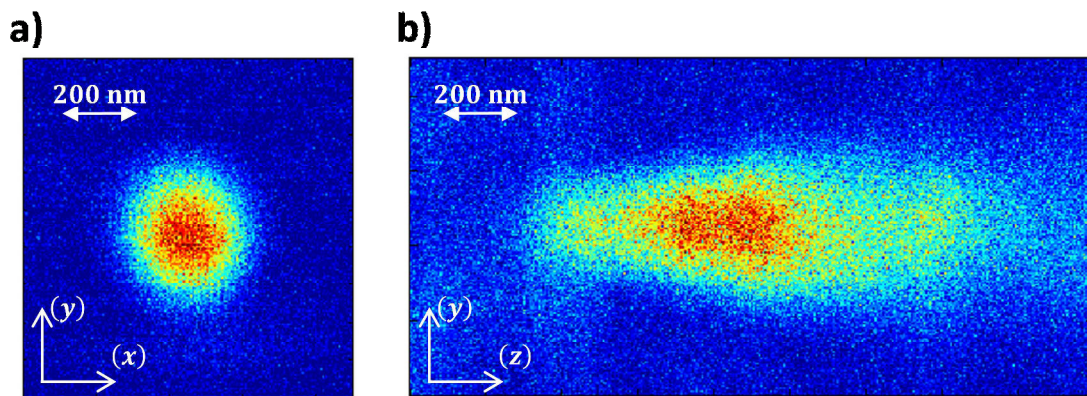


Figure A.2 : Image de photoluminescence d'un centre NV unique dans un échantillon de diamant massif.
a) Balayage dans les directions (x, y) . b) Balayage dans les directions (y, z) .

On constate que la dimension de la coupe transversale (*cf.* [Fig. A.2.a](#)) correspond effectivement à la tache focale précédemment décrite.

Les dimensions de la coupe longitudinale sont plus complexes à interpréter. Il faut considérer qu'au-delà de la longueur de Rayleigh, l'intensité lumineuse d'excitation ne diminue qu'en $\frac{1}{z^2}$ à mesure que l'on s'éloigne du point focal. Le centre NV, décalé sur l'axe (z) par rapport au foyer de l'objectif, reste tout de même éclairé et émet un signal de fluorescence en partie transmis par la pupille. Une quantité proportionnelle à $\frac{1}{z^2}$ est également transmise par la pupille. Enfin, du fait du passage dans un milieu d'indice élevé, une translation en (z) de 1 nm dans l'air correspond à un déplacement du volume sondé de 2,4 nm : il faut donc rajouter un facteur 2,4 dans la direction (z) .

B. Interférométrie de Hanbury Brown et Twiss

Remplaçant le système de détection simple du microscope confocal décrit [Annexe A](#), l'interféromètre de Hanbury-Brown et Twiss [72] permet de vérifier que l'émission de lumière de l'objet étudié s'effectue dans un régime quantique photon par photon. En particulier, il permet de vérifier qu'un seul centre NV – source de photon unique [18] – est présent dans le spot d'excitation du microscope confocal.

B.1 Fonction d'autocorrélation en intensité $g^{(2)}$

On introduit ici la fonction d'autocorrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$, définie par :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t + \tau) \cdot I(t) \rangle_t}{\langle I(t) \rangle_t^2}, \quad (\text{B.1})$$

où $I(t)$ est l'intensité du signal transmis par le microscope confocal et $\langle \rangle_t$ une moyenne sur le temps t .

Si l'émetteur est un objet quantique individuel ayant émis un photon à l'instant t : $I(t) > 0$, il ne peut en émettre un second immédiatement après : $\lim_{\tau \rightarrow 0} I(t + \tau) = 0$. En effet, l'émetteur n'est alors plus dans son état excité lui permettant d'émettre un photon. De cette manière, quel que soit l'instant t , le produit $I(t + \tau) \cdot I(t)$ tend vers 0 lorsque τ tend vers 0. Ainsi, pour un émetteur de photons unique, on a :

$$\lim_{\tau \rightarrow 0} g^{(2)}(\tau) = 0. \quad (\text{B.2})$$

B.2 Dispositif expérimental

Malheureusement, il n'existe pas de détecteur assez rapide pour rendre compte directement de ce phénomène. Les photodiodes à avalanche, capables de détecter des photons uniques, ont un temps mort de l'ordre de 40 ms. Le centre NV, dont l'état excité a une durée de vie de quelques nanosecondes (*cf.* [Ann. C](#)), a largement le temps de se réexciter et de réémettre un photon, lequel ne pourra être détecté.

L'interféromètre de type Hanbury Brown et Twiss, dont le schéma est présenté [Figure B.1.a](#), propose une solution à ce problème : une lame séparatrice 50/50 permet d'utiliser deux photodiodes en parallèle. Lorsque l'une est déclenchée par l'arrivée d'un photon, l'autre est immédiatement disponible pour en recevoir un second. Un analyseur multicanal mesure alors le délai τ entre les déclenchements des deux photodiodes et fournit l'histogramme des délais τ ainsi mesurés. Une fois normalisé³⁷, cet histogramme est un bon estimateur du $g^{(2)}$ défini ci-dessus [18].

³⁷ Pour une source de lumière poissonnienne, le $g^{(2)}$ doit être uniformément égal à 1. En effet, l'arrivée d'un photon n'a aucune incidence sur le suivant. Si on note N_1 (respectivement N_2) le nombre de déclenchement par seconde de la photodiode 1 (respectivement 2) pour une source poissonnienne, la probabilité d'obtenir un déclenchement des deux photodiodes sur un intervalle de temps T_e vaut : $N_1 N_2 T_e$, où T_e correspond à la fenêtre d'échantillonnage de l'analyseur multicanal. Ainsi, pour une durée

B.3 Critère d'unicité

En pratique, le centre NV, même unique, n'est pas la seule source de déclenchement des photodiodes. Un bruit de fond provenant du diamant lui-même (*cf. Chap. I § I.3.3*) et les coups d'obscurité des photodiodes produisent également des déclenchements, qui n'ont pas de corrélation avec la source de photons étudiée. Ainsi, la corrélation à $\tau = 0$ n'est pas exactement nulle. Cependant, on peut montrer que la mesure :

$$g^{(2)}(0) < 1/2 \quad (\text{B.3})$$

est un critère suffisant pour garantir la présence d'un émetteur unique dans le spot confocal. La *Figure B.1.b* trace le $g^{(2)}$ d'un centre NV unique mesuré sur notre système. La *Figure B.1.c* présente la fonction d'autocorrélation dans le cas de deux centres NV présents dans le même spot d'excitation. Le $g^{(2)}$ atteint alors un minimum de $1/2$.

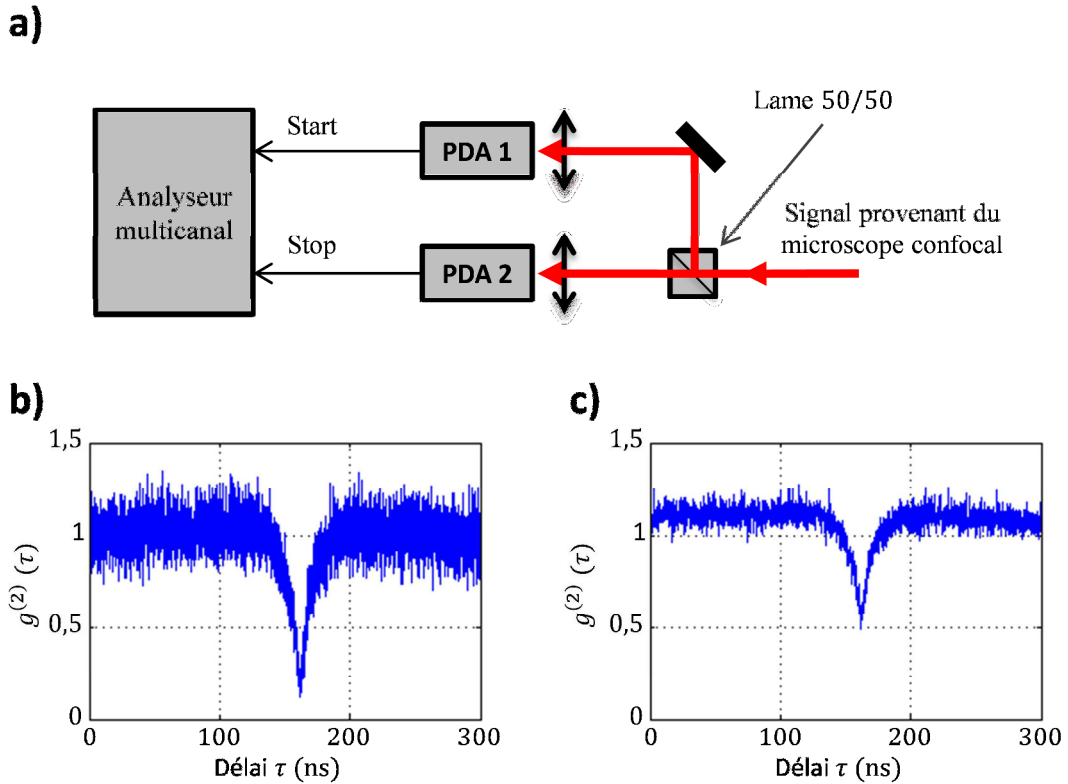


Figure B.1 : Corrélation de photons, interférométrie de Hanbury Brown et Twiss.

a) Montage de Hanbury Brown et Twiss.

b) Courbe d'autocorrélation en intensité d'un centre NV unique.

c) Courbe d'autocorrélation en intensité provenant d'un spot contenant deux centres NV.

d'intégration totale T_{Tot} , l'histogramme décrit ci-dessus doit être normalisé par la grandeur $N_1 N_2 T_e T_{Tot}$. Tous ces paramètres sont fournis par l'analyseur multicanal.

Pour une source de photons uniques, pour des délais τ longs, les arrivées des photons redeviennent décorréliées, et la courbe ainsi normalisée tend vers 1.

C. Modélisation du centre NV

Dans ce paragraphe, nous présentons un modèle de niveaux d'énergie communément admis pour les centres NV [36, 50]. Il nous permet de quantifier les propriétés décrites [Chapitre I \(§ I.5\)](#) et de donner une expression pour le contraste C des résonances magnétiques dans différentes configurations expérimentales.

C.1 Modèle général

La [Figure C.1.a](#) présente le modèle que nous utilisons. Nous notons n_i la population volumique de l'état $|i\rangle$ ³⁸. Pour un ensemble de centres NV de concentration volumique unique n_{NV} , on a :

$$n_{F^0} + n_{F^-} + n_{F^+} + n_{E^0} + n_{E^-} + n_{E^+} + n_M = n_{NV} \quad (\text{C.1})$$

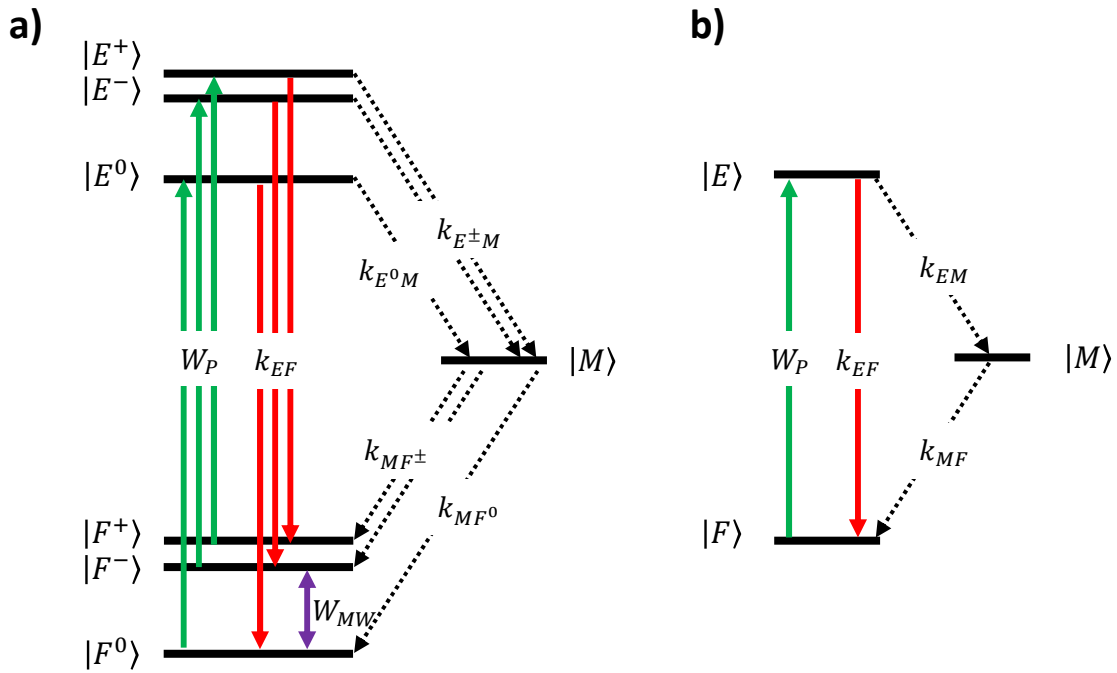


Figure C.1 : Représentation des niveaux d'énergie du centre NV et des transitions autorisées entre eux-ci.

a) Modèle général. b) Modèle simplifié.

Un champ magnétique oscillant introduit des transitions entre les états $|F^0\rangle$ et $|F^- \rangle$, avec un taux W_{MW} (*cf.* [Chap. I Éq. \(I.11\)](#)). Un pompage optique introduit des transitions entre les états fondamentaux (repérés par la lettre F) et les états excités (repérés par la lettre E), avec un taux W_P (*cf.* [Chap. I Éq. \(I.1\)](#)). Nous notons k_{EF} le taux de désexcitation radiative des états excités vers les états fondamentaux. Il s'agit de

³⁸ n_i est le i^{e} élément diagonal de la matrice densité associé aux centres NV.

l'émission spontanée, que l'on suppose indépendante de l'état de spin. Nous notons k_{E^0F} , le taux de transition, non radiative, depuis l'état $|E^0\rangle$, vers l'état métastable $|M\rangle$. Nous supposons que les transitions $|E^- \rangle \rightarrow |M\rangle$ et $|E^+ \rangle \rightarrow |M\rangle$ possèdent un taux identique, noté $k_{E^\pm M}$. De la même manière, nous définissons k_{MF^0} et k_{MF^\pm} les taux de retour de l'état métastable vers l'état fondamental.

Dans le diamant, les interactions spin-réseau sont très faibles. Le temps de relaxation T_1 est typiquement proche de 3 ms. Cette interaction, dont le temps caractéristique conduit à une égalisation des populations des trois niveaux de spin avec une vitesse égale à $1/T_1$, possède une expression analogue à celle de l'interaction W_{MW} . Ce calcul s'effectue dans le cadre où cette interaction est négligeable devant W_{MW} et W_p .

Enfin, nous nous plaçons en régime permanent. Ce qui nous permet d'éliminer, de manière adiabatique, les termes de phases en T_2 , (cf. § I.5.3). Nous développons alors les équations de taux auxquelles est soumis le centre NV.

Explicitons, par exemple, l'évolution de la population de l'état $|F^0\rangle$. Du fait du pompage optique, elle décroît proportionnellement à $n_{F^0}W_p$. Par ailleurs, cet état est repeuplé par les transitions, radiative depuis l'état $|E^0\rangle$ et non radiative depuis l'état $|M\rangle$. Enfin, le champ magnétique oscillant provoque une transition micro-onde proportionnelle à la différence $n_{F^0} - n_{F^-}$. Finalement, en notant $\dot{n}_{F^0} = \frac{dn_{F^0}}{dt}$, l'évolution de la population n_{F^0} s'écrit :

$$\dot{n}_{F^0} = -n_{F^0}W_p + n_{E^0}k_{EF} + n_M k_{MF^0} - (n_{F^0} - n_{F^-})W_{MW}. \quad (\text{C.2})$$

De la même manière, nous pouvons exprimer l'évolution des autres états du système par ce système d'équation :

$$\begin{cases} \dot{n}_{F^0} = -n_{F^0}W_p + n_{E^0}k_{EF} + N n_M k_{MF^0} - (n_{F^0} - n_{F^-})W_{MW} & (1) \\ \dot{n}_{F^-} = -n_{F^-}W_p + n_{E^-}k_{EF} + n_M k_{MF^\pm} + (n_{F^0} - n_{F^-})W_{MW} & (2) \\ \dot{n}_{F^+} = -n_{F^+}W_p + n_{E^+}k_{EF} + n_M k_{MF^\pm} & (3) \\ \dot{n}_{E^0} = +n_{F^0}W_p - n_{E^0}k_{EF} - n_{E^0}k_{E^0M} & (4) \\ \dot{n}_{E^-} = +n_{F^-}W_p - n_{E^-}k_{EF} - n_{E^-}k_{E^\pm M} & (5) \\ \dot{n}_{E^+} = +n_{F^+}W_p - n_{E^+}k_{EF} - n_{E^+}k_{E^\pm M} & (6) \\ \dot{n}_M = +n_{E^0}k_{E^0M} + n_{E^-}k_{E^\pm M} + n_{E^+}k_{E^\pm M} - n_M(k_{MF^0} + 2k_{MF^\pm}) & (7) \\ n_{F^0} + n_{F^-} + n_{F^+} + n_{E^0} + n_{E^-} + n_{E^+} + n_M = n_{NV}. & (8) \end{cases} \quad (\text{C.3})$$

Dans le cadre de cette thèse, nous nous plaçons essentiellement dans le cas d'une excitation continue. En régime stationnaire, ce système s'écrit :

$$\begin{cases}
n_{F^0}W_p = n_{E^0}k_{EF} + n_M k_{MF^0} - (n_{F^0} - n_{F^-})W_{MW} & (1) \\
n_{F^-}W_p = n_{E^-}k_{EF} + n_M k_{MF^\pm} + (n_{F^0} - n_{F^-})W_{MW} & (2) \\
n_{F^+}W_p = n_{E^+}k_{EF} + n_M k_{MF^\pm} & (3) \\
n_{F^0}W_p = n_{E^0}k_{EF} + n_{E^0}k_{E^0M} & (4) \\
n_{F^-}W_p = n_{E^-}k_{EF} + n_{E^+}k_{E^\pm M} & (5) \\
n_{F^+}W_p = n_{E^+}k_{EF} + n_{E^+}k_{E^\pm M} & (6) \\
n_M(k_{MF^0} + 2k_{MF^\pm}) = n_{E^0}k_{E^0M} + n_{E^-}k_{E^\pm M} + n_{E^+}k_{E^\pm M} & (7) \\
n_{F^0} + n_{F^-} + n_{F^+} + n_{E^0} + n_{E^-} + n_{E^+} + n_M = 1. & (8)
\end{cases} \quad (C.4)$$

Les valeurs des paramètres du modèle sont extraites de la publication [36], en bon accord avec [73]. Elles sont référencées [Tableau C.1](#),

Modèle énergétique du centre NV				
Désexcitation radiative	k_{EF}	65,93	μs^{-1}	[36]
Désexcitation non radiative	k_{E^0M}	7,925	μs^{-1}	[36]
	$k_{E^\pm M}$	53,25	μs^{-1}	[36]
	k_{MF^0}	0,975	μs^{-1}	[36]
	k_{MF^\pm}	0,725	μs^{-1}	[36]
Interactions				
Section efficace d'absorption	σ_P	$3 \cdot 10^{-21}$	m^2	[35]
Rapport gyromagnétique	$g\mu_B/h$	28	MHz/mT	
Modèle simplifié				
Sensibilité optimale	k_{MF}	2,425	μs^{-1}	$k_{MF^0} + 2k_{MF^\pm}$
	r_{E^0M}	0,1073		$\frac{k_{E^0M}}{k_{E^0M} + k_{EF}}$
	$r_{E^\pm M}$	0,4468		$\frac{k_{E^\pm M}}{k_{E^\pm M} + k_{EF}}$
	r_{MF^\pm}	0,4265		$\frac{k_{MF^\pm}}{k_{MF^0} + k_{MF^\pm}}$

Tableau C.1 : Modèles énergétique du centre NV

C.2 Résolution d'un modèle simplifié

Afin de simplifier la résolution de ce système, nous regroupons : les états $|F^0\rangle$, $|F^+\rangle$ et $|F^-\rangle$ dans un état $|F\rangle$; les états $|E^0\rangle$, $|E^+\rangle$ et $|E^-\rangle$ dans un état $|E\rangle$ selon :

$$\begin{cases}
n_F = n_{F^0} + n_{F^-} + n_{F^+} \\
n_E = n_{E^0} + n_{E^-} + n_{E^+}.
\end{cases} \quad (C.5)$$

On définit les taux de polarisation r_{E^0} et r_{F^0} dans l'état de spin nul :

$$r_{E^0} = \frac{n_{E^0}}{n_E} \text{ et } r_{F^0} = \frac{n_{F^0}}{n_F}. \quad (\text{C.6})$$

Le taux de transition k_{EM} , depuis l'état excité $|E\rangle$ vers l'état métastable $|M\rangle$, dépend de la polarisation r_{E^0} du système dans l'état de spin nul selon :

$$k_{EM} = (1 - r_{E^0})k_{E^\pm M} + r_{E^0}k_{E^0 M}. \quad (\text{C.7})$$

Par conséquent, k_{EM} dépend de W_p et de W_{MW} . Il sera utilisé comme intermédiaire de calcul. Ce paramètre sera calculé ultérieurement.

Nous notons également k_{MF} le taux de transition vers l'état fondamental $|F\rangle$:

$$k_{MF} = k_{MF^0} + 2k_{MF^\pm} \quad (\text{C.8})$$

Avec ces notations, en faisant la somme des Équations (C.3) (1), (2) et (3) et des Équations (4), (5) et (6), nous obtenons ce système :

$$\begin{cases} \dot{n}_F = -n_F W_p + n_E k_{EF} + n_M k_{MF} & (1) \\ \dot{n}_E = +n_F W_p - n_E k_{EF} - n_E k_{EM} & (2) \\ \dot{n}_M = +n_E k_{EM} - n_M k_{MF} & (3) \\ n_E + n_M + n_F = 1. & (4) \end{cases} \quad (\text{C.9})$$

Ce modèle est fonction de W_{MW} et de W_p par l'intermédiaire du paramètre variable k_{EM} . Il peut être représenté par le modèle de la Figure C.1.b. Les paramètres invariants sont donnés dans le Tableau C.1

Les solutions stationnaires s'écrivent :

$$\begin{cases} n_F W_p = n_E k_{EF} + n_M k_{MF} & (1) \\ n_F W_p = n_E k_{EF} + n_E k_{EM} & (2) \\ n_E k_{EM} = n_M k_{MF} & (3) \\ n_E + n_M + n_F = 1. & (4) \end{cases} \quad (\text{C.10})$$

Calculons la population n_E de l'état $|E\rangle$. Nous substituons l'expression de n_F , donné par l'Équation (C.10) (4), dans l'Équation (C.10) (2) :

$$n_E(k_{EF} + k_{EM}) = (1 - n_E - n_M)W_p. \quad (\text{C.11})$$

Puis, avec l'Équation (C.10) (3) :

$$n_E(k_{EF} + k_{EM}) = \left(1 - n_E \left(1 + \frac{k_{EM}}{k_{MF}}\right)\right)W_p, \quad (\text{C.12})$$

nous obtenons :

$$n_E = \frac{W_p}{(k_{EF} + k_{EM}) + \left(1 + \frac{k_{EM}}{k_{MF}}\right)W_p}. \quad (\text{C.13})$$

Par suite, les Équations (C.10) (2) et (3) nous donnent n_M et n_F , respectivement. Avec ces notations :

$$\begin{cases} n_E^{Max} = \frac{k_{MF}}{k_{MF} + k_{EM}} \\ n_M^{Max} = \frac{k_{EM}}{k_{MF} + k_{EM}} \\ W_p^{Sat} = n_E^{Max} \cdot (k_{EF} + k_{EM}), \end{cases} \quad (C.14)$$

représentant les valeurs de n_E , n_M et W_p en régime de saturation, nous obtenons finalement :

$$\begin{cases} n_E = n_E^{Max} \frac{W_p}{W_p + W_p^{Sat}} \\ n_M = n_M^{Max} \frac{W_p}{W_p + W_p^{Sat}} \\ n_F = \frac{1}{1 + W_p / W_p^{Sat}}. \end{cases} \quad (C.15)$$

L'amplitude de photoluminescence S est proportionnelle à n_E . Néanmoins, il faut rappeler ici que les paramètres de ces expressions (n_E^{Max} , n_M^{Max} et W_p^{Sat}) dépendent de W_p et de W_{MW} par l'intermédiaire de k_{EM} . Selon ce modèle, la courbe de saturation ne suit donc pas simplement l'expression décrite [Chapitre I \(§ I.3.3\)](#).

Le contraste défini [Chapitre I \(§ I.5.2\)](#) peut s'exprimer ainsi :

$$C = \frac{n_E(W_{MW} \neq 0) - n_E(W_{MW} = 0)}{n_E(W_{MW} = 0)}. \quad (C.16)$$

Dans le cadre de la magnétométrie à centre unique (*cf.* [Chap. I § I.6](#)), le faisceau de pompe est focalisé sur le centre NV : la saturation optique est facilement atteignable. Dans ce cas, les [Équations \(C.14\) et \(C.15\)](#) donnent :

$$C_{W_P \gg W_P^{Sat}} = \frac{k_{EM}(W_{MW} \neq 0) - k_{EM}(W_{MW} = 0)}{k_{MF} + k_{EM}(W_{MW} \neq 0)}. \quad (C.17)$$

En revanche, dans le cadre de la magnétométrie en champ large, la puissance de pompe n'est généralement pas suffisante pour atteindre la saturation optique (*cf.* [Chap. II § I.3.3](#)). Dans ce cas, les [Équations \(C.14\) et \(C.15\)](#) donnent :

$$C_{W_P \ll W_P^{Sat}} = \frac{k_{EM}(W_{MW} \neq 0) - k_{EM}(W_{MW} = 0)}{k_{EF} + k_{EM}(W_{MW} \neq 0)}. \quad (C.18)$$

C.3 Calcul de la polarisation du système

Dans l'expression du contraste donnée ci-dessus, il nous reste à calculer k_{EM} , le taux de désexcitation par la voie non radiative. Les autres grandeurs présentes dans les [Équations \(C.17\) et \(C.18\)](#), k_{EF} (défini dans le modèle) et k_{MF} (*cf.* [Éq. \(C.8\)](#)), ne dépendent que des paramètres photophysiques du centre NV (*cf.* [Tabl. C.1](#)). Selon l'[Équation \(C.8\)](#), où est défini k_{EM} , il nous faut déterminer la polarisation r_{E^0} du système dans l'état de spin nul, pour le niveau excité. Pour cela, il nous faut considérer le système dans sa globalité (*cf.* [Fig. C.1.a](#)).

Les Équations (C.4) (4), (5) et (6) donnent des relations simples entre les populations des sous états-excités et des sous-états fondamentaux :

$$\begin{cases} n_{F^0} W_p = n_{E^0} (k_{EF} + k_{E^0M}) & (4) \\ n_{F^-} W_p = n_{E^-} (k_{EF} + k_{E^\pm M}) & (5) \\ n_{F^+} W_p = n_{E^+} (k_{EF} + k_{E^\pm M}). & (6) \end{cases} \quad (C.19)$$

Il s'agit simplement de la compétition entre l'excitation W_p et les désexcitations radiative k_{EF} et non radiatives k_{E^0M} et $k_{E^\pm M}$. Le calcul de la polarisation peut donc être effectué dans l'état fondamental r_{F^0} . Nous commençons par calculer des intermédiaires de calcul, notés $a_{F^-} = \frac{n_{F^-}}{n_{F^0}}$ et $a_{F^+} = \frac{n_{F^+}}{n_{F^0}}$.

Les Équations (C.4) (1) et (2) peuvent donner une relation entre n_{F^-} et n_{F^0} :

$$\begin{cases} n_{F^0} W_p = n_{E^0} k_{EF} + n_M k_{MF^0} - (n_{F^0} - n_{F^-}) W_{MW} & (1) \\ n_{F^-} W_p = n_{E^-} k_{EF} + n_M k_{MF^\pm} + (n_{F^0} - n_{F^-}) W_{MW} & (2) \end{cases} \quad (C.20)$$

n_M est éliminé en faisant la différence de (2) $\times k_{MF^0}$ par (1) $\times k_{MF^\pm}$:

$$\begin{aligned} (n_{F^-} k_{MF^0} - n_{F^0} k_{MF^\pm}) W_p \\ = (n_{E^-} k_{MF^0} - n_{E^0} k_{MF^\pm}) k_{EF} + (n_{F^0} - n_{F^-}) W_{MW} (k_{MF^0} - k_{MF^\pm}). \end{aligned} \quad (C.21)$$

Cela nous donne, en utilisant les Équations (C.19) (4) et (5) :

$$\begin{aligned} n_{F^-} \left[k_{MF^0} W_p - k_{MF^0} k_{EF} \frac{W_p}{k_{EF} + k_{E^\pm M}} + W_{MW} (k_{MF^0} + k_{MF^\pm}) \right] \\ = n_{F^0} \left[k_{MF^\pm} W_p - k_{MF^\pm} k_{EF} \frac{W_p}{k_{EF} + k_{E^0M}} + W_{MW} (k_{MF^0} + k_{MF^\pm}) \right]. \end{aligned} \quad (C.22)$$

Nous obtenons finalement $a_{F^-} = \frac{n_{F^-}}{n_{F^0}}$, tel que :

$$a_{F^-} = \frac{W_p r_{E^0M} r_{MF^\pm} + W_{MW}}{W_p r_{E^\pm M} (1 - r_{MF^\pm}) + W_{MW}}, \quad (C.23)$$

Avec :

$$\begin{aligned} r_{E^0M} &= \frac{k_{E^0M}}{k_{E^0M} + k_{EF}} \\ r_{E^\pm M} &= \frac{k_{E^\pm M}}{k_{E^\pm M} + k_{EF}} \\ r_{MF^\pm} &= \frac{k_{MF^\pm}}{k_{MF^0} + k_{MF^\pm}}. \end{aligned} \quad (C.24)$$

De la même manière, nous pouvons obtenir une relation entre n_{F^+} et n_{F^0} à partir des Équations (C.4) (1) et (3) :

$$a_{F^+} = \frac{n_{F^+}}{n_{F^0}} = \frac{k_{MF^\pm}}{k_{MF^0}} \cdot \frac{W_p r_{E^0M} + (1 - a_{F^-}) W_{MW}}{W_p r_{MF^\pm}}. \quad (C.25)$$

Les Équations (C.19) (4), (5) et (6) donnent par ailleurs, pour l'état excité :

$$a_{E^-} = \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}} \cdot a_{F^-} \quad a_{E^+} = \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}} \cdot a_{F^+}. \quad (C.26)$$

Ces paramètres de calcul dépendent effectivement du rapport W_{MW}/W_p . Dans le cas où l'excitation micro-onde prévaut, le système possède davantage de populations dans les états de spins non nuls.

C.4 Polarisation en l'absence de micro-onde

En l'absence de micro-onde, signifiée par l'exposant « 0 », le système est polarisé dans l'état de spin nul. Nous donnons, [Tableau C.2](#), les applications numériques des grandeurs décrites ci-dessus. Par exemple, dans l'état fondamental :

$$\begin{aligned} a_{F^\pm}^0 &= a_{F^-}(W_{MW} = 0) = a_{F^+}(W_{MW} = 0) \\ a_{F^\pm}^0 &= \frac{r_{E^0M}}{r_{E^\pm M}} \cdot \frac{k_{MF^\pm}}{k_{MF^0}} \\ a_{F^\pm}^0 &= 0,1786. \end{aligned} \tag{C.27}$$

Nous pouvons alors calculer le taux de polarisation r_{F^0} dans l'état de spin nul pour le fondamental :

$$\begin{aligned} r_{F^0}^0 &= \frac{1}{1 + 2a_{F^\pm}^0} \\ r_{F^0}^0 &= 0,7368. \end{aligned} \tag{C.28}$$

De la même manière, dans l'état excité, avec l'Équation (C.26) :

$$\begin{aligned} a_{E^\pm}^0 &= a_{E^-}(W_{MW} = 0) = a_{E^+}(W_{MW} = 0) \\ a_{E^\pm}^0 &= \frac{k_{E^0M}k_{MF^\pm}}{k_{E^\pm M}k_{MF^0}} \\ a_{E^\pm}^0 &= 0,1107, \end{aligned} \tag{C.29}$$

et

$$\begin{aligned} r_{E^0}^0 &= \frac{1}{1 + 2a_{E^\pm}^0} \\ r_{E^0}^0 &= 0,8188. \end{aligned} \tag{C.30}$$

De cette manière, le système est polarisé par le pompage optique seull : près de 82 % des centres NV dans leur état excité possèdent un spin nul.

Nous pouvons alors calculer les autres paramètres et les reporter [Tableau C.2](#).

$a_{F^\pm}^0$	0,1786 μs^{-1}	$\frac{r_{E^0M}}{r_{E^\pm M}} \cdot \frac{k_{MF^\pm}}{k_{MF^0}}$
$a_{E^\pm}^0$	0,1107	$a_{F^\pm}^0 \cdot \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}} = \frac{k_{E^0M} k_{MF^\pm}}{k_{E^\pm M} k_{MF^0}}$
$r_{E^0}^0$	0,8188	$\frac{1}{1 + 2a_{E^\pm}^0}$
k_{EM}^0	16,138 μs^{-1}	$(1 - r_{E^0}) \cdot k_{E^\pm M} + r_{E^0} \cdot k_{E^0M}$
n_E^{Max0}	0,1306	$\frac{k_{MF}}{k_{MF} + k_{EM}^0}$
W_P^{Sat0}	10,724 μs^{-1}	$n_E^{Max0} \cdot (k_{EF} + k_{EM}^0)$
I_P^{Sat0}	1,3 GW/m^2	$\frac{W_P^{Sat0}}{\sigma_P} \cdot \frac{hc}{\lambda_P}$

Tableau C.2 : Cas $W_{MW} = 0$.

C.5 Cas de la magnétométrie

Dans le cadre de la magnétométrie décrite [Chapitre III](#), l'amplitude du champ micro-onde peut être choisie de sorte à saturer la transition magnétique, quel que soit le taux de pompage (*cf.* § III.4.4.2) : $W_{MW} \gg W_P$. Dans ce cas, l'égalisation des populations n_{F^0} et n_{F^-} est assurée :

$$\begin{aligned} a_{F^-}^\infty &= a_{F^-}(W_{MW} \gg W_P) \\ a_{F^-}^\infty &= 1, \end{aligned} \quad (\text{C.31})$$

et dans l'état excité :

$$\begin{aligned} a_{E^-}^\infty &= \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}} \\ a_{E^-}^\infty &= 0,6197. \end{aligned} \quad (\text{C.32})$$

Concernant l'état de spin $m_s = +1$, l'Équation (C.25) donne pour l'état fondamental :

$$\begin{aligned} a_{F^+}^\infty &= r_{MF^\pm} \left(\frac{r_{E^0M}}{r_{E^\pm M}} + 1 \right) \\ a_{F^+}^\infty &= 0,5294, \end{aligned} \quad (\text{C.33})$$

et pour l'état excité :

$$\begin{aligned} a_{E^+}^\infty &= r_{MF^\pm} \left(\frac{r_{E^0M}}{r_{E^\pm M}} + 1 \right) \cdot \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}} \\ a_{E^+}^\infty &= 0,3281. \end{aligned} \quad (\text{C.34})$$

Nous pouvons alors calculer le taux de polarisation $r_{E^0}^\infty$ dans l'état fondamental :

$$\begin{aligned} r_{E^0}^\infty &= \frac{1}{1 + a_{E^-}^\infty + a_{E^+}^\infty} \\ r_{E^0}^\infty &= 0,5134. \end{aligned} \quad (\text{C.35})$$

Les applications numériques des autres paramètres sont données [Tableau C.3](#).

$a_{E^-}^\infty$	0,6197	$\frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}}$
$a_{E^+}^\infty$	0,3281	$a_{F^+}^\infty \cdot \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^\pm M}}$
$r_{E^0}^\infty$	0,5134	$\frac{1}{1 + a_{E^-}^\infty + a_{E^+}^\infty}$
k_{EM}^∞	29,980 μs^{-1}	$(1 - r_{E^0}^\infty)k_{E^\pm M} + r_{E^0}^\infty k_{E^0M}$
$n_E^{Max\infty}$	0,0748	$\frac{k_{MF}}{k_{MF} + k_{EM}^\infty}$
$W_P^{Sat\infty}$	7,1741 μs^{-1}	$n_E^{Max\infty} \cdot (k_{EF} + k_{EM}^\infty)$
C cas $W_P \ll W_{PSat}$	0,1443	$\frac{k_{EM}^\infty - k_{EM}^0}{k_{EF} + k_{EM}^\infty}$
C cas $W_P \gg W_{PSat}$	0,4271	$\frac{k_{EM}^\infty - k_{EM}^0}{k_{MF} + k_{EM}^\infty}$

Tableau C.3 : Cas $W_{MW} \gg W_P$.

On constate que le contraste des résonances est plus faible dans le cas où l'on se trouve loin de la saturation optique. Dans le cas de la cartographie de champs magnétiques, où les huit résonances magnétiques sont séparées les unes des autres, une seule composante est visible à la fois : les autres contribuent seulement à réduire le contraste d'un facteur quatre. Dans ce cas, le contraste serait égal à 3,6 %. En pratique, dans le cadre de la cartographie de champ magnétique, les contrastes mesurés sont entre 1 à 1,5 % (*cf.* Chap. III § III.4.4). La différence observée peut provenir de la photoluminescence parasite du diamant, provenant par exemple des centres NV^0 ou d'autres défauts qui demeurent dans le diamant. Le modèle présenté ici peut également être questionné. En particulier, la présence d'une relaxation spin-réseau irait à l'encontre des effets de polarisation dans l'état de spin nul.

C.6 Cas de l'analyse de spectres

Dans le cas de l'application à l'analyse de spectres, on cherche à détecter un champ hyperfréquence dont l'amplitude est potentiellement très faible. Nous effectuons donc un développement limité à l'ordre 1 des grandeurs décrites ci-dessus et du contraste, en particulier dans la limite où $\frac{W_{MW}}{W_P} \rightarrow 0$. L'Équation (C.23) donne pour l'état $m_S = -1$:

$$a_{F^-} = a_{F^\pm}^0 + (1 - a_{F^\pm}^0) \cdot \frac{1}{r_{E^\pm M} \cdot (1 - r_{MF^\pm})} \cdot \frac{W_{MW}}{W_P} + o\left(\frac{W_{MW}}{W_P}\right). \quad (\text{C.36})$$

De la même manière, l'Équation (C.25) donne pour l'état $m_S = +1$

$$a_{F^+} = a_{F^\pm}^0 + (1 - a_{F^\pm}^0) \cdot \frac{r_{MF^\pm}}{r_{E^\pm M} \cdot (1 - r_{MF^\pm})} \cdot \frac{W_{MW}}{W_P} + o\left(\frac{W_{MW}}{W_P}\right). \quad (\text{C.37})$$

Dans l'état excité, on a :

$$a_{E^+} + a_{E^-} = \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{E^{\pm}M}} \cdot 2a_{F^{\pm}}^0 \quad (\text{C.38})$$

$$+ (1 - a_{F^{\pm}}^0) \cdot \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{E^{\pm}M}} \cdot \frac{k_{MF^0} + 2k_{MF^{\pm}}}{k_{MF^0}} \cdot \frac{W_{MW}}{W_P} + o\left(\frac{W_{MW}}{W_P}\right).$$

Nous pouvons alors calculer le taux de transfert vers l'état excité :

$$k_{EM} = k_{EM}^0 + (1 - a_{F^{\pm}}^0) \cdot \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{E^{\pm}M}} \cdot \frac{k_{MF^0} + 2k_{MF^{\pm}}}{k_{MF^0}} \cdot \frac{W_{MW}}{W_P} \cdot k_{E^{\pm}M} \quad (\text{C.39})$$

$$+ o\left(\frac{W_{MW}}{W_P}\right),$$

ainsi que le contraste de la résonance magnétique dans le cas $W_P \ll W_P^{Sat}$:

$$C = (1 - a_{F^{\pm}}^0) \cdot \frac{k_{EF} + k_{E^0M}}{k_{EF} + k_{EM}^0} \cdot \frac{k_{MF^0} + 2k_{MF^{\pm}}}{k_{MF^0}} \cdot \frac{W_{MW}}{W_P} + o\left(\frac{W_{MW}}{W_P}\right). \quad (\text{C.40})$$

Ce calcul a été réalisé en prévision d'une étude plus poussée de la sensibilité des centres NV à un champ hyperfréquence. L'ébauche de cette étude est présentée [Chapitre IV \(§ IV.6.3\)](#). Cependant, la configuration optimale de détection d'un champ hyperfréquence n'est peut-être pas le maintien d'une excitation optique importante lorsque le champ hyperfréquence est faible. En effet, nous constatons [Équation \(C.40\)](#) que le contraste sera d'autant plus faible que l'excitation optique est importante.

C.7 Transition à 1 042 nm

Nous nous intéressons ici plus particulièrement à l'état métastable $|M\rangle$ décrit [Paragraphe C.1](#) et [Chapitre I \(§ I.4\)](#). En effet, ce niveau regroupe en réalité deux niveaux singulets responsables de la transition infrarouge étudiée [Chapitre I \(§ I.7\)](#). Nous notons k_{HB} le taux d'émission spontanée de $|M_H\rangle$ (Haut) vers $|M_B\rangle$ (Bas) et $\lambda_S = 1\,042\text{ nm}$, la longueur d'onde à zéro phonon de cette transition. Contrairement aux transitions dans le visible décrites précédemment, le couplage avec le réseau est beaucoup plus faible, de sorte que la transition infrarouge est relativement fine : environ 1 nm à température ambiante [49]. L'ajout d'un faisceau sonde d'intensité I_S à la longueur d'onde λ_S introduit des transitions additionnelles (absorption et émission stimulée) entre ces niveaux. Nous notons W_S ce taux. Il s'exprime en fonction de la section efficace σ_S de cette transition, selon :

$$W_S = \sigma_S \cdot I_S \frac{\lambda_S}{hc}. \quad (\text{C.41})$$

Nous notons : n_B la population du niveau $|M_B\rangle$; n_H la population du niveau $|M_H\rangle$; $r_B = \frac{n_B}{n_B + n_H}$. Par ailleurs nous redéfinissons, k_{BF^0} et $k_{BF^{\pm}}$, les taux de retours vers l'état fondamental depuis l'état métastable bas $|M_B\rangle$. Les taux k_{MF^0} et $k_{MF^{\pm}}$, définis [Paragraphe C.3](#), correspondent en réalité aux taux de transitions depuis l'état métastable global $|M\rangle$ en l'absence de faisceau sonde, c'est-à-dire pour $r_B = 1$. Dans un cas plus général, nous avons :

$$\begin{aligned} k_{MF^0} &= r_B \cdot k_{BF^0} \\ k_{MF^\pm} &= r_B \cdot k_{BF^\pm}. \end{aligned} \quad (\text{C.42})$$

De la même manière, les transitions depuis l'état excité vers l'état métastable s'écrivent désormais k_{E^0H} et $k_{E^\pm H}$. La Figure C.2.a présente le diagramme électronique qui correspond à ce modèle.

Les valeurs numériques de ces paramètres photophysiques sont données Tableau C.4.

Afin de calculer r_B , nous considérons le système simplifié représenté Figure C.2.b, analogue de celui du Paragraphe C.2.

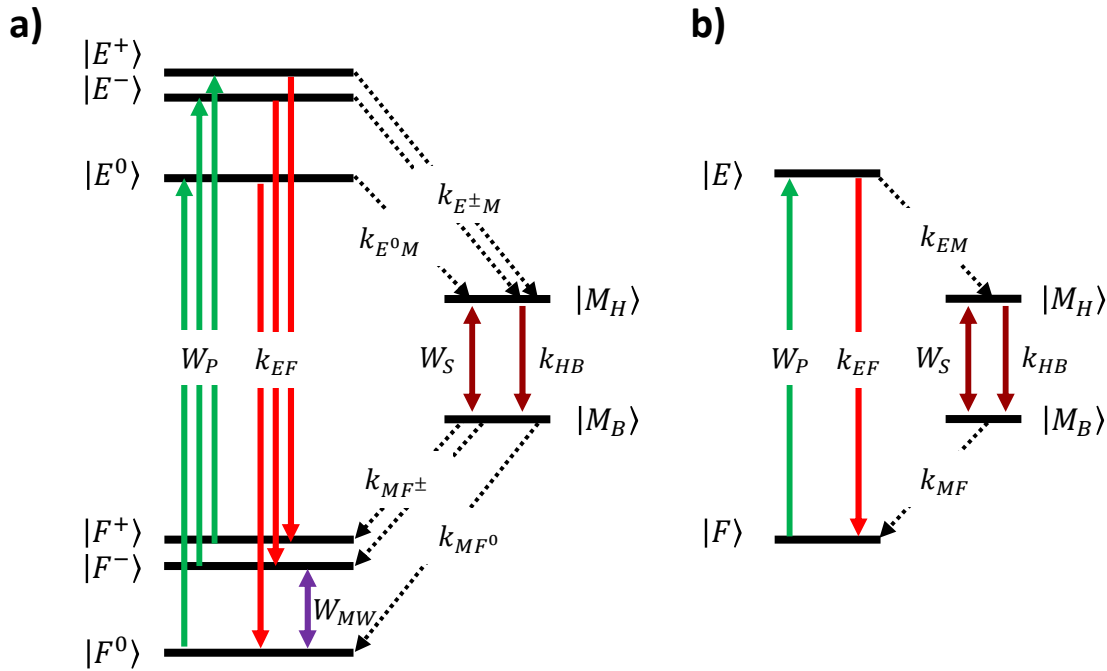


Figure C.2 : Modèles énergétiques du centre NV, transition à 1 042 nm.
a) Modèle général. b) Modèle simplifié.

Ce système s'écrit :

$$\begin{cases} \dot{n}_F = -n_F W_p + n_E k_{EF} + n_B k_{BF} & (1) \\ \dot{n}_E = +n_F W_p - n_E k_{EF} - n_E k_{EH} & (2) \\ \dot{n}_H = +n_E k_{EH} - n_H k_{HB} + (n_B - n_H) W_S & (3) \\ \dot{n}_B = -n_B k_{BF} + n_H k_{HB} - (n_B - n_H) W_S & (4) \\ n_E + n_B + n_H + n_F = 1. & (5) \end{cases} \quad (\text{C.43})$$

En particulier, nous recherchons les solutions stationnaires :

$$\begin{cases} n_F W_p = n_E k_{EF} + n_B k_{BF} & (1) \\ n_F W_p = n_E k_{EF} + n_E k_{EH} & (2) \\ n_E k_{EH} = n_H k_{HB} - (n_B - n_H) W_S & (3) \\ n_B k_{BF} = n_H k_{HB} - (n_B - n_H) W_S & (4) \\ n_E + n_B + n_H + n_F = 1. & (5) \end{cases} \quad (\text{C.44})$$

L'Équation (C.44) (4) nous donne une relation directe en n_B et n_H :

$$\begin{aligned} n_B(W_S - k_{BF}) &= n_H(W_S - k_{HB}) \\ r_B &= \frac{W_S + k_{HB}}{2W_S + k_{HB} + k_{BF}}. \end{aligned} \quad (\text{C.45})$$

La publication [74] reporte la durée de vie du niveau haut : $k_{HB}^{-1} = 1$ ns, très faible devant la durée de vie du niveau bas : $k_{BF}^{-1} = (k_{BF^0} + 2k_{BF^\pm})^{-1} = 420$ ns. Ainsi, en l'absence de faisceau sonde ($I_S = 0$ et $W_S = 0$), l'état métastable est très largement polarisé dans le niveau bas :

$$r_B \underset{W_S=0}{=} \frac{k_{HB}}{k_{HB} + k_{BF}} = 1 - 2,4 \cdot 10^{-3}. \quad (\text{C.46})$$

Dans le cas contraire, lorsque $W_S \gg k_{BF}$, nous obtenons une égalisation des populations :

$$r_B \underset{\frac{W_S}{k_{HB}} \rightarrow \infty}{=} \frac{1}{2}. \quad (\text{C.47})$$

Nous pouvons noter, dès à présent, qu'il est très difficile expérimentalement d'obtenir une telle saturation sur un ensemble de centres NV. En effet, la section efficace est très faible (*cf.* Tabl. C.4) et l'intensité de saturation associée est de l'ordre de $500 \text{ GW} \cdot \text{m}^{-2}$ [50]. Par exemple, pour une surface de $100 \times 100 \mu\text{m}^2$, la saturation nécessiterait une puissance de sonde de l'ordre de 50 W.

De ce fait, il sera souvent possible de négliger la population du niveau haut et de poser $r_B = 1$. Le modèle faisant intervenir un unique niveau d'énergie pour le métastable reste indiqué dans la plupart des cas. Néanmoins, nous proposons, [Chapitre I \(§ I.7\)](#), une méthode permettant d'utiliser efficacement cette transition pour détecter les résonances magnétiques des centres NV.

Modèle électrodynamique du centre NV		Valeur	Référence
Transition vers l'état métastable	k_{E^0H}	7,925 μs^{-1}	[36]
	$k_{E^\pm H}$	53,25 μs^{-1}	[36]
Retour vers l'état fondamental	k_{BF^0}	0,975 μs^{-1}	[36]
	k_{BF^\pm}	0,725 μs^{-1}	[36]
Section efficace d'absorption	σ_S	$2 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$	[50]
Intensité de saturation	I_S^{sat}	500 $\text{GW} \cdot \text{m}^{-2}$	$\frac{hc}{\lambda_S} \cdot \frac{k_{HB}}{2\sigma_S}$

Tableau C.4 : Transition à 1 042 nm.

Bibliographie

- [1] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald et N. P. Ong, «Anomalous Hall effect», *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, n° 12, pp. 1539-1592, 2010.
- [2] J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-V. Kim, L. H. Diez, M.-P. Adam, K. Garcia, J.-F. Roch, S. Rohart, A. Thiaville, D. Ravelosona et V. Jacques, «Nanoscale imaging and control of domain-wall hopping with a nitrogen-vacancy center microscope», *Science*, vol. 344, n° 16190, pp. 1366-1369, 2014.
- [3] L. T. Hall, C. D. Hill, J. H. Cole, B. Stadler, F. Caruso, P. Mulvaney, J. Wrachtrup et L. C. Hollenberg, «Monitoring Ion-Channel Function in Real Time Through Quantum Decoherence», *P. Natl. Acad. Sci. USA*, vol. 107, n° 144, pp. 18777-18782, 2010.
- [4] L. T. Hall, G. C. G. Beart, E. A. Thomas, D. A. Simpson, L. P. McGuinness, J. H. Cole, J. H. Manton, R. E. Scholten, F. Jelezko, J. Wrachtrup, S. Petrou et L. C. L. Hollenberg, «High spatial and temporal resolution wide-field imaging of neuron activity using quantum {NV-diamond}», *Sci. Rep.*, vol. 2, 2012.
- [5] M. Freeman et B. Choi, «Advances in magnetic microscopy», *Science*, vol. 294, n° 15546, pp. 1484-1488, 2001.
- [6] J. R. Kirtley, «Fundamental studies of superconductors using scanning magnetic imaging», *Rep. Prog. Phys.*, vol. 73, n° 112, p. 126501, 2010.
- [7] D. Rugar, J. Sidles et A. Hero, «Single-Spin Magnetic Resonance Force Microscopy», *Nature*, vol. 430, n° 1330, 2004.
- [8] C. Degen, M. Poggio, H. J. Mamin, C. T. Rettner et D. Rugar, «Nanoscale Magnetic Resonance Imaging», *P. Natl. Acad. Sci. USA*, vol. 106, n° 15, pp. 1313-1317, 2009.
- [9] A. Sandhu, A. Okamoto, I. Shibusaki et A. Oral, «Nano and micro Hall-effect sensors for room-temperature scanning hall probe microscopy», *Microelectron. Eng.*, vol. 73, pp. 524-528, 2004.
- [10] D. Budker et M. Romalis, «Optical magnetometry», *Nat. Phys*, vol. 3, n° 14, pp. 227-234, 2007.
- [11] M. Vengalattore, J. M. Higbie, S. R. Leslie, J. Guzman, L. E. Sadler et D. M. Stamper-Kurn, «High-Resolution Magnetometry with a Spinor Bose-Einstein Condensate», *Phys. Rev. Lett.*, vol. 98, n° 120, 2007.
- [12] C. Degen, «Nanoscale magnetometry: Microscopy with single spins», *Nat. Nano.*, vol. 3, n° 111, pp. 643-644, 2008.
- [13] J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P. R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth et M. D. Lukin, «High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution», *Nat. Phys*, vol. 4, n° 110, pp. 810-816, 2008.
- [14] L. Rondin, *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant*, 2012.

- [15] J.-P. Tetienne, *Un microscope de champ magnétique basé sur le défaut azote-lacune du diamant : réalisation et application à l'étude de couches ferromagnétiques ultraminces*, 2014.
- [16] P. Maletinsky, S. Hong, M. S. Grinolds, B. Hausmann, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, M. Loncar et A. Yacoby, «A robust scanning diamond sensor for nanoscale imaging with single nitrogen-vacancy centres», *Nat. Nano.*, vol. 7, n° 15, pp. 320-324, 2012.
- [17] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup et C. V. Borczyskowski, «Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers», *Science*, vol. 276, n° 15321, pp. 2012-2014, 1997.
- [18] R. Brouri, A. Beveratos, J. P. Poizat et P. Grangier, «Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond», *Opt. Lett.*, vol. 25, n° 117, pp. 1294-1296, 2000.
- [19] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda et H. Weifurter, «Stable Solide-State Source of Single Photons», *Phys. Rev. Lett.*, n° 185, pp. 290-293, 2000.
- [20] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat et P. Grangier, «Single Photon Quantum Cryptography», *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, n° 118, 2002.
- [21] A. S. Barnard, «Diamond standard in diagnostics: nanodiamond biolabels make their mark», *Analyst*, vol. 134, pp. 1751-1764, 2009.
- [22] L. Childress et R. Hanson, «Diamond NV centers for quantum computing and quantum networks», *MRS Bulletin*, vol. 38, pp. 134-138, 2013.
- [23] J. S. Hodges, N. Y. Yao, D. Maclaurin, C. Rastogi, M. D. Lukin et D. Englund, «Timekeeping with electron spin states in diamond», *Phys. Rev. A*, vol. 87, p. 032118, 2013.
- [24] S. Steinert, F. Dolde, P. Neumann, A. Aird, B. Naydenov, G. Balasubramanian, F. Jelezko et J. Wrachtrup, «High sensitivity magnetic imaging using an array of spins in diamond», *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 81, n° 14, pp. 043705--043705-5, 2010.
- [25] L. M. Pham, D. Le Sage, P. L. Stanwix, T. K. Yeung, D. Glenn, A. Trifonov, P. Cappellaro, P. R. Hemmer, M. D. Lukin, H. Park, A. Yacoby et R. L. Walsworth, «Magnetic field imaging with nitrogen-vacancy ensembles», *New J. Phys.*, vol. 13, n° 14, p. 045021, 2011.
- [26] D. Le Sage, K. Arai, D. Glenn, S. DeVience, L. Pham, L. Rahn-Lee, M. Lukin, A. Yacoby, A. Komeili et R. Walsworth, «Optical magnetic imaging of living cells», *Nature*, vol. 496, n° 17446, pp. 486-489, 2013.
- [27] J. Achard, F. Silva, R. Issaoui, O. Brinza, A. Tallaire, H. Schneider, K. Isoird, H. Ding, S. Koné, M. Pinault, F. Jomard et A. Gicquel, «Thick boron doped diamond single crystals for high power electronics», *Diam. Rel. Mat.*, vol. 20, n° 12, pp. 145-152, 2011.

- [28] P. Muret, P.-N. Volpe, T.-N. Tran-Thi, J. Pernot, C. Hoarau, F. Omnès et T. Teraji, «Schottky diode architectures on p-type diamond for fast switching, high forward current density and high breakdown field rectifiers», *Diam. Rel. Mat.*, vol. 20, n° 13, pp. 285-289, 2011.
- [29] K. C. Lee, M. R. Sprague, B. J. Sussman, J. Nunn, N. K. Langford, X.-M. Jin, T. Champion, P. Michelberger, K. F. Reim, D. England, D. Jaksch et I. A. Walmsley, «Entangling Macroscopic Diamonds at Room Temperature», *Science*, vol. 334, n° 16060, pp. 1253-1256, 2011.
- [30] T. E. Glover, D. M. Fritz, M. Cammarata, T. K. Allison, S. Coh, J. M. Feldkamp, H. Lemke, D. Zhu, Y. Feng, R. N. Coffee, M. Fuchs, S. Ghimire, J. Chen, S. Schwartz, D. A. Reis, S. E. Harris et J. B. Hastings, «X-ray and optical wave mixing», *Nature*, vol. 488, n° 17413, pp. 603-608, 2012.
- [31] M. Bonnauron, S. Saada, L. Rousseau, G. Lissorgues, C. Mer et P. Bergonzo, «High aspect ratio diamond microelectrode array for neuronal activity measurements», *Diam. Rel. Mat.*, vol. 17, pp. 1399-1404, 2008.
- [32] A. E. Hadjinicolaou, R. T. Leung, D. J. Garrett, K. Ganesan, K. Fox, D. A. Nayagam, M. N. Shivdasani, H. Meffin, M. R. Ibbotson, S. Praver et B. J. O'Brien, «Electrical stimulation of retinal ganglion cells with diamond and the development of an all diamond retinal prosthesis», *Biomaterials*, vol. 33, n° 124, pp. 5812-5820, 2012.
- [33] A. Zaitsev, *Optical Properties of Diamond: A Data Handbook*, Springer, 2001.
- [34] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup et L. C. Hollenberg, «The nitrogen-vacancy colour centre in diamond», *Physics Reports*, vol. 528, n° 11, pp. 1-45, 2013.
- [35] T.-L. Wee, Y.-K. Tzeng, C.-C. Han, H.-C. Chang, W. Fann, J.-H. Hsu, K.-M. Chen et Y.-C. Yu, «Two-photon Excited Fluorescence of Nitrogen-Vacancy Centers in Proton-Irradiated Type Ib Diamond», *The Journal of Physical Chemistry A*, vol. 111, n° 138, pp. 9379-9386, 2007.
- [36] J.-P. Tetienne, L. Rondin, P. Spinicelli, M. Chipaux, T. Debuisschert, J.-F. Roch et V. Jacques, «Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond: an application to qualitative all-optical magnetic imaging», *New Journal of Physics*, vol. 14, n° 110, p. 103033, 2012.
- [37] A. Dréau, M. Lesik, L. Rondin, P. Spinicelli, O. Arcizet, J.-F. Roch et V. Jacques, «Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity», *Phys. Rev. B*, vol. 84, n° 119, p. 195204, 2011.
- [38] K. Jensen, V. M. Acosta, A. Jarmola et D. Budker, «Light narrowing of magnetic resonances in ensembles of nitrogen-vacancy centers in diamond», *Phys. Rev. B*, vol. 87, p. 014115, 2013.

- [39] S. Felton, A. M. Edmonds, M. E. Newton, P. M. Martineau, D. Fisher, D. J. Twitchen et J. M. Baker, «Hyperfine interaction in the ground state of the negatively charged nitrogen vacancy center in diamond», *Phys. Rev. B*, vol. 79, p. 075203, 2009.
- [40] G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tissler, V. Jacques, P. R. Hemmer, F. Jelezko et J. Wrachtrup, «Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond», *Nat. Mat.*, vol. 8, n° 15, pp. 383-387, 2009.
- [41] L. Rondin, J.-P. Tetienne, T. Hingan, J.-F. Roch, P. Maletinsky et V. Jacques, «Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond», *Rep. Prog. Phys.*, vol. 77, n° 1056503, 2014.
- [42] F. P. Bundy, H. T. Hall, H. M. Strong et R. H. Wentorf, «Man-Made Diamonds», *Nature*, vol. 176, n° 14471, pp. 51-55, 1955.
- [43] M. Markham, J. Dodson, G. Scarsbrook, D. Twitchen, G. Balasubramanian, F. Jelezko et J. Wrachtrup, «CVD diamond for spintronics», *Diam. Rel. Mat.*, vol. 20, n° 12, pp. 134-139, 2011.
- [44] T. Ishikawa, K.-M. C. Fu, C. Santori, V. M. Acosta, R. G. Beausoleil, H. Watanabe, S. Shikata et K. M. Itoh, «Optical and Spin Coherence Properties of Nitrogen-Vacancy Centers Placed in a 100 nm Thick Isotopically Purified Diamond Layer», *Nano Letters*, vol. 12, n° 14, pp. 2083-2087, 2012.
- [45] G. de Lange, D. Riste, V. V. Dobrovitski et R. Hanson, «Single-Spin Magnetometry with Multipulse Sensing Sequences», *Phys. Rev. Lett.*, vol. 106, n° 18, p. 080802, 2011.
- [46] L. Rondin, J.-P. Tetienne, P. Spinicelli, C. Dal Savio, K. Karrai, G. Dantelle, A. Thiaville, S. Rohart, J.-F. Roch et V. Jacques, «Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer», *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, n° 115, pp. -, 2012.
- [47] T. M. Babinec, B. J. M. Hausmann, M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer et M. Lonkar, «A diamond nanowire single-photon source», *Nat. Nano.*, vol. 5, n° 13, pp. 195-199, 2010.
- [48] L. J. Rogers, S. Armstrong, M. J. Sellars et N. B. Manson, «Infrared emission of the NV centre in diamond: Zeeman and uniaxial stress studies», *New J. Phys.*, vol. 10, n° 110, p. 103024, 2008.
- [49] V. M. Acosta, A. Jarmola, E. Bauch et D. Budker, «Optical properties of the nitrogen-vacancy singlet levels in diamond», *Phys. Rev. B*, vol. 82, n° 120, pp. 201-202, 2010.
- [50] Y. Dumeige, M. Chipaux, V. Jacques, F. Treussart, J.-F. Roch, T. Debuisschert, V. M. Acosta, A. Jarmola, K. Jensen, P. Kehayias et D. Budker, «Magnetometry with nitrogen-vacancy ensembles in diamond based on infrared absorption in a doubly resonant optical cavity», *Phys. Rev. B*, vol. 87, p. 155202, 2013.

- [51] V. M. Acosta, E. Bauch, A. Jarmola, L. J. Zipp, M. P. Ledbetter et D. Budker, «Broadband magnetometry by infrared-absorption detection of nitrogen-vacancy ensembles in diamond», *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, n° 117, p. 174104, 2010.
- [52] S. Pezzagna, B. Naydenov, F. Jelezko, J. Wrachtrup et J. Meijer, «Creation efficiency of nitrogen-vacancy centres in diamond», *New Journal of Physics*, vol. 12, n° 16, p. 065017, 2010.
- [53] P. Spinicelli, A. Dréau, L. Rondin, F. Silva, J. Achard, S. Xavier, S. Bansropun, T. Debuisschert, S. Pezzagna, J. Meijer, V. Jacques et J.-F. Roch, «Engineered arrays of nitrogen-vacancy color centers in diamond based on implantation of CN- molecules through nanoapertures», *New J. Phys.*, vol. 13, n° 12, p. 025014, 2011.
- [54] A. M. Edmonds, U. F. S. D'Haenens-Johansson, R. J. Cruddace, M. E. Newton, K.-M. C. Fu, C. Santori, R. G. Beausoleil, D. J. Twitchen et M. L. Markham, «Production of oriented nitrogen-vacancy color centers in synthetic diamond», *Phys. Rev. B*, vol. 86, p. 035201, 2012.
- [55] M. Lesik, J.-P. Tetienne, A. Tallaire, J. Achard, V. Mille, A. Gicquel, J.-F. Roch et V. Jacques, «Perfect preferential orientation of nitrogen-vacancy defects in a synthetic diamond sample», *Applied Physics Letters*, vol. 104, n° 111, pp. -, 2014.
- [56] J. Michl, T. Teraji, S. Zaiser, I. Jakobi, G. Waldherr, F. Dolde, P. Neumann, M. W. Doherty, N. B. Manson, J. Isoya et J. Wrachtrup, «Perfect alignment and preferential orientation of nitrogen-vacancy centers during chemical vapor deposition diamond growth on (111) surfaces», *Applied Physics Letters*, vol. 104, n° 110, pp. -, 2014.
- [57] L. Rondin, G. Dantelle, A. Slablab, F. Grosshans, F. Treussart, P. Bergonzo, S. Perruchas, T. Gacoin, M. Chaigneau, H.-C. Chang, V. Jacques et J.-F. Roch, «Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds», *Phys. Rev. B*, vol. 82, n° 111, p. 115449, 2010.
- [58] M. V. Hauf, B. Grotz, B. Naydenov, M. Dankerl, S. Pezzagna, J. Meijer, F. Jelezko, J. Wrachtrup, M. Stutzmann, F. Reinhard et J. A. Garrido, «Chemical control of the charge state of nitrogen-vacancy centers in diamond», *Phys. Rev. B*, vol. 83, n° 18, p. 081304, 2011.
- [59] A. Batalov, K. Beha, N. Manson, R. Bratschitsch et A. Leitenstorfer, «Charge switching dynamics and optimal excitation wavelength of single NV centers in ultrapure diamond», 2012.
- [60] T. Gaebel, M. Domhan, C. Wittmann, I. Popa, F. Jelezko, J. Rabeau, A. Greentree, S. Prawer, E. Trajkov, P. Hemmer et J. Wrachtrup, «Photochromism in single nitrogen-vacancy defect in diamond», *Appl. Phys. B*, vol. 82, n° 12, pp. 243-246, 2005.
- [61] M. Chipaux, A. Tallaire, S. pezzagna, J. Meijer, J.-F. Roch, V. Jacques et T. Debuisschert, «Magnetic imaging with an ensemble of NV centers in diamond», *Hasselt Diamond Workshop*, 2014.

- [62] M. Chipaux, A. Tallaire, J. Achard, S. Pezzagna, J. Meijer, V. Jacques, J.-F. Roch et T. Debuisschert, «Magnetic imaging with an ensemble of Nitrogen Vacancy centers in diamond», *Arxiv*, n° 1410.0178v1, 2014.
- [63] K. Levenberg, «A method for the solution of certain problems in least squares», *Quarterly of applied mathematics*, vol. 2, pp. 164-168, 1944.
- [64] D. W. Marquardt, «An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters», *Journal of the Society for Industrial & Applied Mathematics*, vol. 11, n° 12, pp. 431-441, 1963.
- [65] T. P. M. Alegre, C. Santori, G. Medeiros-Ribeiro et R. G. Beausoleil, «Polarization-selective excitation of nitrogen vacancy centers in diamond», *Phys. Rev. B*, vol. 76, n° 116, 2007.
- [66] B. J. Roth, S. N. G. et W. J. P, «Using a magnetometer to image a two-dinemsional current distribution», *J. Appl. Phys.*, vol. 65, n° 11, pp. 361-372, 1989.
- [67] J. Gaudestad et A. Orozco, «Magnetic Field Imaging for non destructive 3D IC testing», *Microelectronics Reliability*, vol. 54, pp. 2093-2098, 2014.
- [68] M. Chipaux, L. Toraille, T. Debuisschert, C. Larat, L. Morvan et J. Meijer, «Analyseur de spectre à base de centres NV dans le diamant», Brevet FR 14 02429, 2014.
- [69] M. Skolnik, «Role of radar in microwaves», *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on*, vol. 50, n° 13, pp. 625-632, 2002.
- [70] K. D. Merkel, S. H. Bekker, C. R. Stiffler, A. Traxinger, A. Woidtke, S. P. B, M. Chase, W. R. Babbitt, B. ZW et C. Harrington, «Continuous Wideband Spectrum Analysis over 10 GHz BandwBand with 61 dBc Spur-Free Dynamic Range», chez *Microwave Photonics 2013*, 2013.
- [71] T. Wilson, *Confocal Microscopy*, Academic Press Inc, 1990.
- [72] C. Gerry et P. Knight, *Introductory Quantum Optics*, Cambridge University Press, 2004.
- [73] L. Robledo, H. Bernien, T. v. d. Sar et R. Hanson, «Spin dynamics in the optical cycle of single nitrogen-vacancy centres in diamond», *New J. Phys.*, vol. 13, n° 12, p. 025013, 2011.
- [74] B. J. Maertz, A. P. Wijnheijmer, G. D. Fuchs, M. E. Nowakowski et D. D. Awschalom, «Vector magnetic field microscopy using nitrogen vacancy centers in diamond», *Appl. Phys. Lett.*, vol. 96, n° 19, p. 092504, 2010.

Résumé

Le centre coloré azote-lacune du diamant, appelé centre NV, est comparable à un atome piégé à l'état solide. Ses propriétés de spin, conservées à température ambiante, permettent la détection de résonances magnétiques par voie purement optique.

Le travail décrit dans cette thèse est centré sur l'utilisation d'ensembles de centres NV pour répondre à des problématiques à la fois scientifiques et industrielles. Nous avons réalisé un microscope de photoluminescence permettant d'exploiter les propriétés d'une couche nanométrique de centres NV. Les images obtenues ont une résolution spatiale de 500 nm et les fluctuations du signal sont limitées par le bruit de photons.

En soumettant les centres NV à un signal hyperfréquence connu, nous pouvons reconstituer la cartographie à l'échelle microscopique des trois composantes d'espace d'un champ magnétique : par exemple, celui produit par un conducteur parcouru par un courant. La sensibilité associée à une surface d'intégration de $1 \mu\text{m}^2$ de la couche de centres NV est de l'ordre du microtesla par racine de hertz.

Notre dispositif d'imagerie permet également d'analyser le spectre d'un signal hyperfréquence. En soumettant les centres NV à un gradient de champ magnétique connu, l'information spectrale est transformée en information spatiale. Des résultats préliminaires montrent l'analyse simultanée d'une bande de fréquences de 700 MHz associée à une résolution de 7 MHz et à un taux de rafraîchissement de 4 ms.

Ces travaux illustrent les perspectives prometteuses du centre NV du diamant, notamment pour le contrôle de circuits électroniques et l'analyse en temps réel de spectres hyperfréquences pris dans leur ensemble.

Summary

The nitrogen-vacancy color center of diamond, called NV center, is an atom like system trapped in a solid lattice. Its spin properties, kept at room temperature, allow the detection of magnetic resonances by purely optical means.

The work described in this thesis is focused on the use of NV centers' ensembles targeting both scientific and industrial issues. We realized a photoluminescence microscope that exploits the properties of a nanoscale layer of NV centers. The spatial resolution of the resulting image is around 500 nm and the fluctuations of the signal is limited by the shot-noise.

When the NV centers are submitted to a microwave signal with frequency is known, the cartography of the three spatial components of the magnetic field, the one produced by a conductor carrying a current for example, can be determined at the microscopic scale. The sensitivity associated to an integration surface on the NV center layer of $1 \mu\text{m}^2$ is in the order of the microtesla per square root of hertz.

Our imaging device also leads to the spectral analysis of a microwave signal. When the NV centers are submitted to a known magnetic field gradient, the spectral information is transformed into spatial information. Preliminary results show the simultaneous analysis of a 700 MHz frequency band associated to a resolution of 7 MHz and a refresh rate of 4 ms.

These works illustrate promising perspectives for the NV center of diamond, especially for the control of electronic circuits and the real time analysis of a whole microwave spectrum.